

ORSAY
SERIE A
N° D'ORDRE

480

INSCRIT AUX ARCHIVES ORIGINALES
DU CENTRE DE DOCUMENTATION
C.N.R.S. SOUS LE N°

AO. 3152

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES D'ORSAY
UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS-SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Robert PAULIN

PREMIÈRE THÈSE

ANNIHILATION DU POSITON DANS LES SOLIDES
DIFFUSION DU POSITONIUM

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 28 avril 1969 devant la commission d'examen

MM. FRIEDEL

Président

BLANDIN

LAMBERT

BRANDT

}
Examineurs

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES D'ORSAY
UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS-SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Robert PAULIN

PREMIÈRE THÈSE

ANNIHILATION DU POSITON DANS LES SOLIDES
DIFFUSION DU POSITONIUM

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 28 avril 1969 devant la commission d'examen

MM. FRIEDEL

Président

BLANDIN

LAMBERT

BRANDT

Examineurs



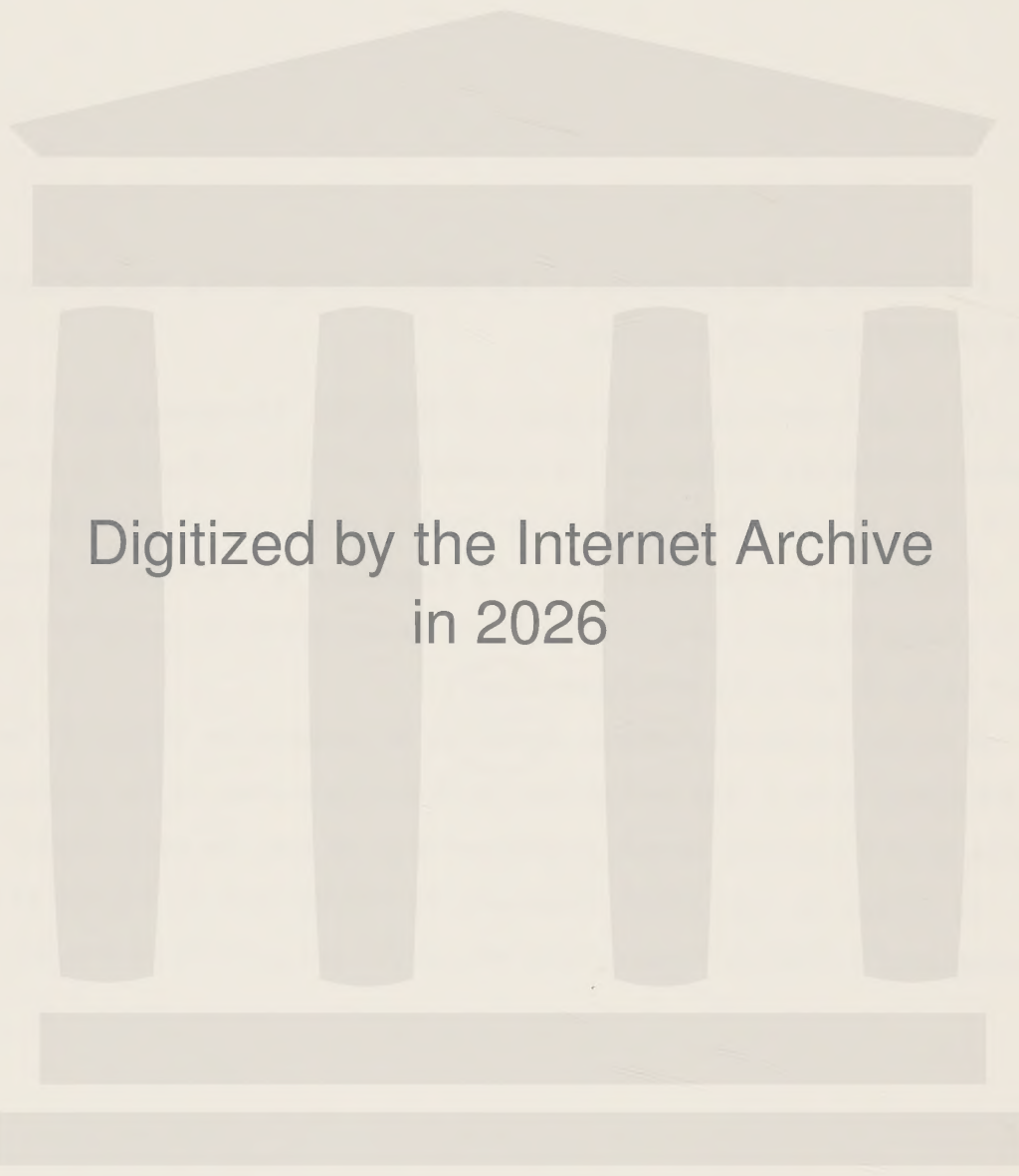
Ce travail a été effectué à l'INSTITUT NATIONAL DES SCIENCES
ET TECHNIQUES NUCLEAIRES.

Je tiens à remercier Monsieur DEBIESSE, Directeur du Centre
d'Etudes Nucléaires de Saclay, et Monsieur BAUER, Adjoint au Directeur
de l'I. N. S. T. N. pour les facilités de travail qu'ils m'ont accordées

J'exprime ma reconnaissance à Monsieur le Professeur FRIEDEL
pour la compréhension qu'il a manifestée à mon égard en acceptant de
diriger cette thèse et de présider le jury.

Il m'est particulièrement agréable de remercier Monsieur le Profes-
seur BRANDT pour l'aide précieuse qu'il m'a apportée et les nombreux
conseils qu'il n'a cessé de me prodiguer tout au long de cette étude.

Je remercie également Monsieur le Professeur BLANDIN et Madame
le Professeur LAMBERT pour l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41552220_0015

TABLE DES MATIERES

	Page
<u>INTRODUCTION</u>	
<u>PREMIERE PARTIE</u>	
CHAPITRE I - ANNIHILATION DU POSITON	3
I.1 - Processus d'annihilation	5
I.2 - Règles de sélection	6
I.3 - Section efficace et taux d'annihilation	7
I.4 - Corrélation angulaire des photons d'annihilation	8
CHAPITRE II - ETATS LIES ELECTRON-POSITON : POSITONIUM	11
II.1 - Propriétés du positonium	11
II.2 - Structure fine et effet Zeeman	13
II.3 - Formation et destruction du positonium	14
II.4 - Identification du positonium	18
CHAPITRE III - METHODES EXPERIMENTALES D'OBSERVATION DE L'ANNIHILATION DU POSITON	19
III.1 - Mesure du temps de vie du positon	19
III.2 - Corrélation angulaire des annihilations à 2γ	23
III.3 - Détermination de la probabilité d'annihilation à 3γ	25
CHAPITRE IV - ANNIHILATION DU POSITON DANS LES CRISTAUX IONIQUES	27
IV.1 - Halogénures alcalins	27
IV.2 - Oxydes alcalino-terreux	28

DEUXIEME PARTIE

CHAPITRE I - DESCRIPTION DE L'APPAREILLAGE	33
1.1 - Banc de traitement thermique et préparation des sources	33
1.2 - Dispositif de détection et montage électronique	36
1.3 - Vérification de l'appareillage	38
CHAPITRE II - PRECISION DES MESURES ET ECHANTILLONS	43
II.1 - Précision des mesures	43
II.2 - Caractéristiques des échantillons	45
CHAPITRE III - RESULTATS EXPERIMENTAUX	49
III.1 - Temps de vie du positon dans les oxydes alcalino-terreux et différents autres types de poudre	49
III.2 - Etude des conditions d'existence de $\hat{\tau}_3$	52
III.3 - Nature de la composante $\hat{\tau}_3$	61
III.4 - Influence de la surface	66

TROISIEME PARTIE

CHAPITRE I - DIFFUSION DU POSITONIUM	75
1.1 - Diffusion dans un grain	75
1.2 - Diffusion dans une poudre	78
1.3 - Paramètres physiques caractéristiques de la diffusion du positonium dans différentes poudres	83
1.3.1 - Constantes de diffusion et parcours moyen avant annihilation	83
1.3.2 - Influence de la température	85
CHAPITRE II - PROPRIETES DU POSITONIUM DANS LE VOLUME LIBRE	89
II.1 - Probabilité de diffusion à l'intérieur des grains	89
II.2 - Taux de "pick-off" du positonium dans l'espace intergranulaire	94

	Page
<u>QUATRIEME PARTIE - APPLICATIONS</u>	
CHAPITRE I - REALISATION DE SOURCES DE $o\text{-P}_s$ LIBRE	103
CHAPITRE II - QUENCHING DE $l'o\text{-P}_s$ par O_2 et NO A DIFFERENTES ENERGIES	105
<u>CONCLUSION</u>	111
<u>BIBLIOGRAPHIE</u>	

INTRODUCTION

Depuis sa découverte par Anderson [1,2] en 1933, l'électron positif n'a cessé d'être à l'origine de nombreux travaux de recherche. Si dans un premier stade ces investigations se sont efforcées d'établir les caractéristiques du positon en tant que particule libre, [3,4,5] très rapidement l'intérêt s'est orienté vers ses propriétés d'interaction avec la matière.

L'étude des processus d'annihilation a ainsi apporté une brillante confirmation de la théorie électro-magnétique avec notamment la découverte du positonium [6,7] et la vérification expérimentale de ses propriétés fondamentales.

Là ne se limite pas cependant l'intérêt du positon qui peut encore fournir des renseignements sur le milieu où se produit son annihilation. Il s'avère toutefois relativement difficile de tirer pleinement partie de ce genre d'informations. La perturbation apportée par la présence même du positon dans la matière est en effet non négligeable et doit être correctement évaluée pour accéder aux paramètres physiques.

De ce point de vue bon nombre des résultats expérimentaux obtenus par cette méthode demeurent encore en partie inexploités faute d'une analyse suffisante.

C'est dans ce souci d'analyse que nous avons conduit cette étude relative à l'annihilation du positon dans certaines poudres très désordonnées présentant une grande surface spécifique où les propriétés du positonium formé s'avèrent révélatrices de l'état physique de ces solides.

Dans une première partie nous rappelons brièvement les lois de l'annihilation, les propriétés du positonium, les méthodes de mesure et les caractéristiques de l'annihilation du positon dans les cristaux ioniques.

La description de l'appareillage et les résultats expérimentaux qui mettent en évidence la présence de deux mécanismes d'annihilation distincts pour l'ortho-positonium formé dans certaines poudres sont rapportés dans la deuxième partie ainsi que l'influence de divers facteurs sur ce phénomène.

La troisième partie est consacrée à l'analyse des propriétés du positonium révélées par ces résultats en fonction des caractéristiques physiques de ces poudres.

Les applications suggérées par ces propriétés originales sont présentées dans la quatrième partie et illustrées sur quelques exemples.

PREMIERE PARTIE

CHAPITRE I - ANNIHILATION DU POSITON

- I.1 - Processus d'annihilation
- I.2 - Règles de sélection
- I.3 - Section efficace et taux d'annihilation
- I.4 - Distribution énergétique et angulaire des photons d'annihilation

CHAPITRE II - ETATS LIES ELECTRON-POSITON : POSITONIUM

- II.1 - Propriétés du positonium
- II.2 - Structure fine et effet Zeeman
- II.3 - Formation et destruction du positonium
- II.4 - Identification du positonium

CHAPITRE III - METHODE EXPERIMENTALE D'OBSERVATION DE L'ANNIHILATION DU POSITON

- III.1 - Mesure du temps de vie du positon
- III.2 - Corrélation angulaire des annihilations à 2 γ
- III.3 - Détermination de la probabilité d'annihilation à 3 γ

CHAPITRE IV - ANNIHILATION DU POSITON DANS LES CRISTAUX IONIQUES

- IV.1 - Halogénures alcalins
- IV.2 - Oxydes alcalino-terreux

CHAPITRE I - ANNIHILATION DU POSITON

Le positon présente les mêmes valeurs de charge, masse, spin et moment magnétique que son anti-particule l'électron. Il n'en diffère que par les signes opposés de sa charge et de son moment magnétique. Par conséquent, ses propriétés obéiront aux lois de la mécanique quantique, sans être limitées dans la matière par le principe d'exclusion de Pauli.

Les deux anti-particules peuvent s'annihiler avec émission de rayonnement qui emporte l'énergie ainsi libérée. [3,8]. Dans la matière le positon cède son énergie cinétique par excitation et ionisation des atomes du milieu. La section efficace d'annihilation est inversement proportionnelle à la vitesse relative des deux particules [9] de sorte que la probabilité d'annihilation en vol est faible et la majeure partie des positons s'annihilent librement avec un électron après thermalisation.

Toutefois au cours de son ralentissement dans des milieux à faible densité électronique, le positon peut, dans un intervalle d'énergie bien défini, intervalle de Ore, [10] se lier à un électron pour former un atome de nature purement électromagnétique nommé Positonium (Ps).

Le nombre de gammas émis au cours d'une annihilation dépend de l'orientation relative des spins de l'électron et du positon.

L'énergie d'annihilation sera partagée, pour des spins parallèles état ortho, entre trois photons γ et entre 2 photons γ pour des spins antiparallèles, état para.

L'annihilation dans un état para est le processus le plus probable pour des positons libres ou liés dans un atome de para-positonium (p-Ps). Pour des positons liés dans un atome d'ortho-positonium (o-Ps) l'émission de 3 gammas ne sera effective que si cet atome s'annihile librement. De l'interaction de l'o-Ps avec le milieu peut en effet résulter une annihilation libre du positon ou lié sous forme para.

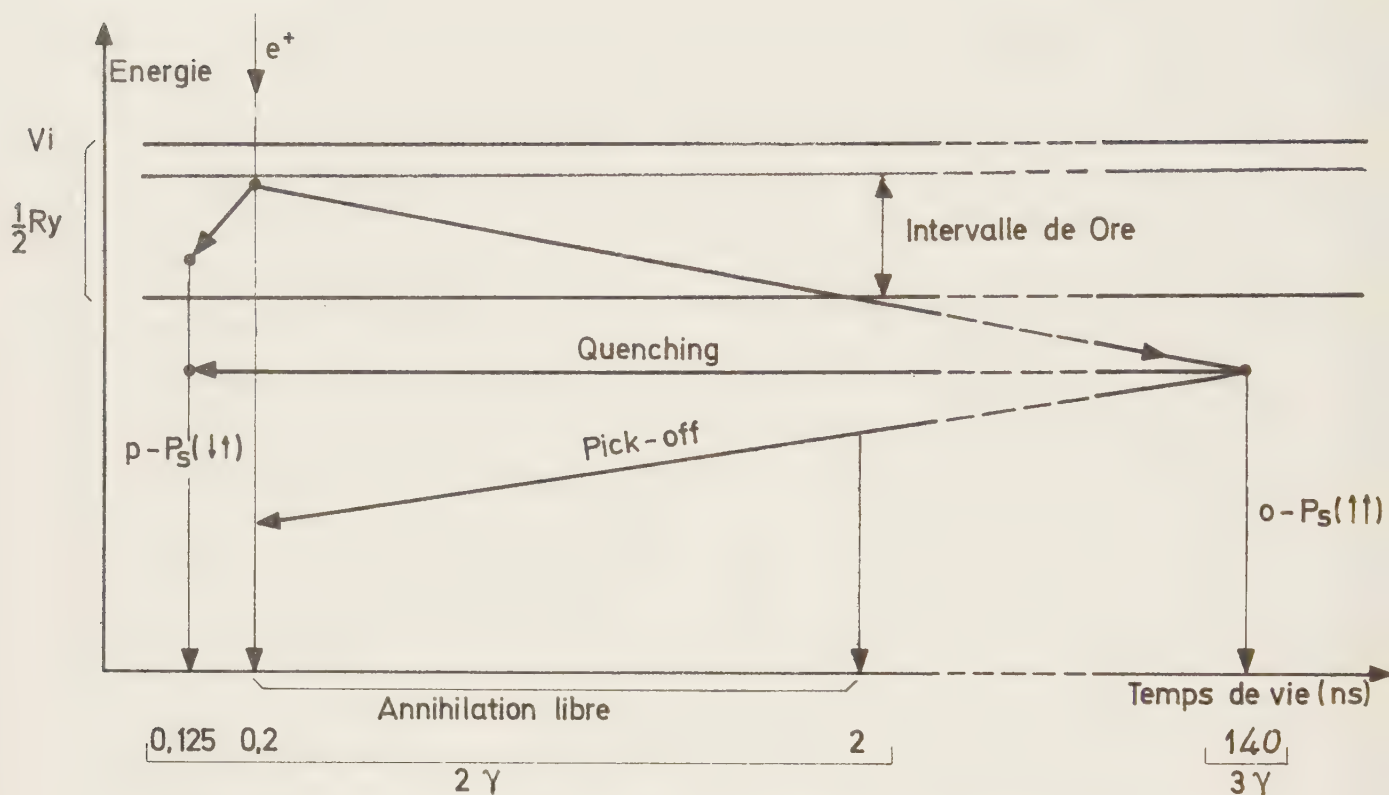


Fig. 1 - Diagramme des principaux processus d'annihilation du positon

Ces principaux processus d'annihilation sont schématisés Figure 1. Ils peuvent être étudiés par l'une des trois méthodes expérimentales schématisées Figure 2.

La mesure du temps de vie du positon (2A) permet de distinguer et d'évaluer l'intensité des différents processus d'annihilation. Les deux autres méthodes, corrélation angulaire à 2γ (2C), et détection en coïncidence triple (2B) servent à étudier plus spécifiquement les mécaniques d'annihilation dans des états para et ortho respectivement.

La majeure partie des résultats que nous présentons ont été obtenus avec la première de ces méthodes.

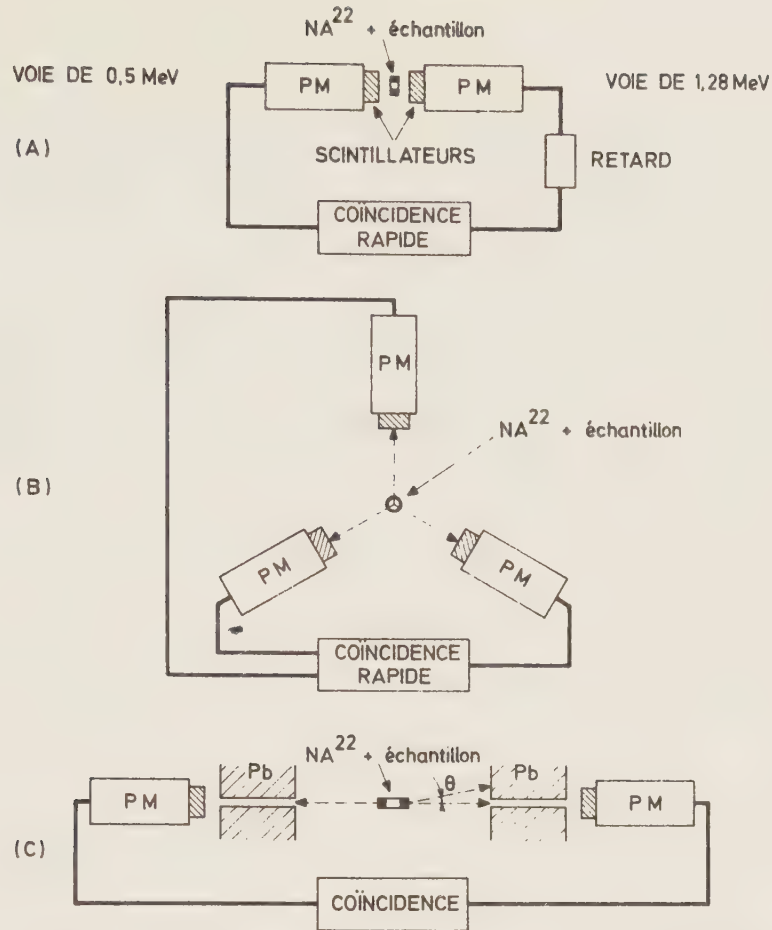


Fig. 2 - SCHEMA DES DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX POUR OBSERVER

- A) le temps de vie du positon
- B) le taux d'annihilation à 3 °
- C) la corrélation angulaire des annihilations à 2 °

1.1 - Processus d'annihilation

Le phénomène d'annihilation par collision avec des électrons peut conduire à l'émission de un, deux ou trois photons.

La section efficace des différents processus d'annihilation dépend du nombre de photons émis. Augmenter de une unité le nombre de photons émis ou absorbés dans le processus, diminue la section efficace par un facteur de l'ordre de la constante de structure fine

$$\alpha = \frac{e^2}{\hbar c} = \frac{1}{137}$$

Le processus à un seul photon exige la présence d'un troisième corps, noyau A ou électron, afin de satisfaire à la loi de conservation de l'impulsion :



L'annihilation sans émission de photon est théoriquement possible en présence de deux noyaux ou électrons étrangers à la paire, qui absorbent l'énergie et l'impulsion libérées : $e^+ + e^- + 2M \rightarrow 2M$; de tels processus d'annihilation sont très rares et peuvent être ignorés.

Dans le cas de l'annihilation à un seul photon, il apparaît en outre, un autre facteur, qui diminue fortement la probabilité du processus. Ce facteur $(\hbar/mc)^3 \rho$, où $\frac{\hbar}{mc}$ est la longueur d'onde Compton de l'électron ($\lambda_c = 3,86 \cdot 10^{-11}$ cm) et ρ la concentration des atomes étrangers, à un ordre de grandeur de α^3 .

Le rapport des sections efficaces des processus à trois et deux photons $\frac{\sigma_{3\gamma}}{\sigma_{2\gamma}}$ est donc de l'ordre de α , tandis que le rapport $\frac{\sigma_{\gamma}}{\sigma_{2\gamma}}$ est de l'ordre de α^2 .

1.2 - Règles de sélection [11 à 14]

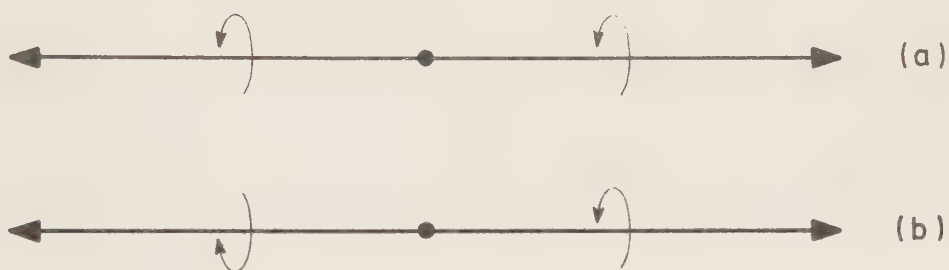
La conservation de la parité dans les interactions électro-magnétiques, impose en outre, des règles de sélection vis à vis des différents processus.

La parité de charge P_c du photon est négative, soit pour un système de n photons $P_c = (-1)^n$.

La parité de charge pour un système électron-positon est $P_c = P_i P_l P_\sigma$ où P_i est la parité interne égale à -1 pour une paire particule-antiparticule, $P_l = (-1)^l$ est la parité d'espace égale à +1 pour des positons et électrons lents ($l = 0$) et, $P_\sigma = -(-1)^\sigma$ est la parité de spin. Pour des spins du positon et de l'électron parallèles, état ortho ($\sigma = 1$ et $J = 1$ car $l = 0$), la parité de spin est positive : $P_\sigma = 1$; pour des spins antiparallèles, état para ($\sigma = 0$, $J = 0$) la parité est négative : $P_\sigma = -1$.

L'annihilation dans un état para $P_c = 1$, sera donc toujours accompagnée de l'émission d'un nombre pair de photons, celle de l'état ortho $P_c = -1$, de l'émission d'un nombre impair de photons.

Si seule la conservation de la parité s'oppose à l'annihilation à 3γ d'un état para, elle ne constitue pas l'unique interdiction vis à vis de l'annihilation à 2γ de l'état ortho. Même si la parité était violée, celle-ci demeurerait interdite par la loi de conservation du moment angulaire. En effet, deux photons de polarisation circulaire opposée, par rapport à leur direction de propagation émis, à 180° (a), ont une composante, en projection, de moment angulaire égal à $m = 2$, ce qui est incompatible avec $J = 0$ ou $J = 1$. Deux photons de même polarisation (b) à 180° ont une projection de moment angulaire $m = 0$, ce qui est compatible avec $J = 0$, mais non avec $J = 1$.



1.3 - Section efficace et taux d'annihilation

La section efficace d'annihilation à 2γ pour un électron et un positon libres a été calculée par Dirac [9].

Pour des électrons non relativistes, $\beta \ll 1$, elle s'écrit :

$$\sigma_2 = \frac{\pi r_o^2}{\beta} \quad (1)$$

où $\beta = \frac{v}{c}$ désigne la vitesse relative du positon et de l'électron et $r_o = \frac{e^2}{mc^2} = 2,8 \cdot 10^{-13}$ cm le rayon de l'électron et du positon.

Cette section efficace représente une moyenne sur tous les états de spins initiaux.

Le rapport des sections efficaces des annihilations à 3 γ et 2 γ moyennées sur les états des spins est donné par [15] :

$$\frac{\sigma_{3\gamma}}{\sigma_{2\gamma}} = \frac{2J_T + 1}{2J_S + 1} \times \frac{4}{9\pi} (\pi^2 - 9) \alpha = \frac{1}{372} \quad (2)$$

où $J_T = 1$ et $J_S = 0$.

Avec des spins distribués de manière statistique l'évènement à 3 γ sera donc près de 400 fois moins fréquent que celui à 2 γ .

Le taux d'annihilation λ du positon dans un milieu de densité n , est donc :

$$\lambda_{2\gamma} = \pi r_o^2 c n \quad (3)$$

Sa vie moyenne sera :

$$\tau_{2\gamma} = \frac{1}{\lambda_{2\gamma}} \quad (4)$$

Puisqu'il y a trois collisions de type ortho pour une de type para, le taux d'annihilation à 3 γ doit être pondéré par un facteur 3 pour être comparé au taux à 2 γ :

$$\frac{\lambda_{3\gamma}}{\lambda_{2\gamma}} = \frac{1}{3 \times 372} = \frac{1}{1116} \quad (5)$$

La section efficace d'annihilation à un seul γ dépend de la charge Z du corps étranger, pour $\beta \ll 1$ elle est de :

$$\sigma_{\gamma} \approx \frac{4}{3} \pi r_o^2 \alpha^4 Z^5 \beta \quad (6)$$

Elle décroît donc quand la vitesse du positon diminue au contraire de la section efficace à 2 γ qui elle augmente.

1.4 - Corrélation angulaire des photons d'annihilation

Les deux photons résultants de l'annihilation d'un état singulet, sont émis à 180° et possèdent une énergie de $m_o c^2$ quand le positon et l'électron s'annihilent au repos.

Cette répartition de l'énergie et cette distribution angulaire peuvent être toutefois faiblement modifiées par le mouvement de l'électron et du positon.

Si la vitesse V de translation du centre de masse de la paire électron-positon fait des angles θ_1 , et θ_2 avec les photons d'annihilation dans le système du laboratoire et si ψ et $-\psi$ désignent les angles correspondants dans le système du centre de masse, la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement conduisent aux relations suivantes :

$$\cot g\theta = \frac{\frac{V}{c} + \cos \psi}{\sqrt{1 - \frac{V^2}{c^2}} \sin \psi} \quad (7)$$

$$E = \frac{E_t}{2} \left(1 + \frac{V}{c} \cos \psi \right) \quad (8)$$

où E_1 et E_2 désignent l'énergie des photons émis et E_t l'énergie totale de la paire qui s'annihile : $E_t = 2mc^2 + E_+ + E_-$.

Pour $\psi = 0$, $\theta_1 = 0$ et $\theta_2 = 180^\circ$, les deux gammas sont toujours émis à 180° , mais leur énergie diffère d'une quantité $\frac{V}{c} E_t$.

Pour $\psi = 90^\circ$, les deux quantas ont des énergies identiques, très voisines de mc^2 , mais ils ne sont plus émis à 180° ($\cotg \theta \approx \frac{V}{c}$). L'angle $\Delta\psi$ dont l'un des photons s'écarte de la direction de l'autre est $\Delta\psi = \frac{2V}{c}$.

La mesure de la corrélation angulaire ou de la distribution en énergie des photons d'annihilation donne donc une information sur la vitesse relative à laquelle s'annihile la paire électron-positon. Si le positon ne s'annihile qu'après avoir été thermalisé, ce qui est le cas le plus fréquent, ce genre de mesures fournit donc une information sur la vitesse des électrons.

Dans le cas de l'annihilation à 3 γ , il existe un nombre beaucoup plus grand de combinaisons permettant de satisfaire aux lois de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement. Les photons γ peuvent en effet avoir une énergie quelconque

entre 0 et mc^2 d'où l'émission d'un spectre continu, calculé par Ore et Powell [15] (figure 3) après estimation de l'élément de matrice de transition sommé sur les directions de polarisation :

$$\sum_{pol} \langle H^2 \rangle = \frac{C^4}{k_1 k_2 k_3} \times [(1-\cos \alpha)^2 + (1-\cos \beta)^2 + (1-\cos \gamma)^2] \quad (9)$$

où α , β , γ sont les angles formés par les trois photons de quantité de mouvement k_1 , k_2 , k_3 .

Cette fonction est maximum quand deux des quantas sont émis dans la même direction c'est-à-dire $\alpha = \beta = \pi$ et $\gamma = 0$, le troisième quantum a alors une énergie proche de mc^2 .

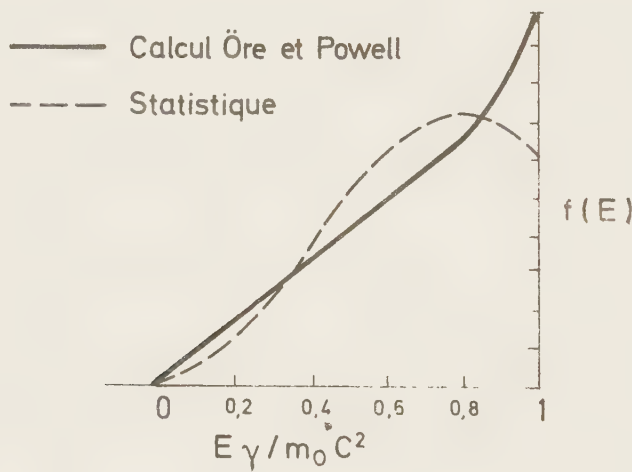


Fig. 3 - Spectre d'énergie des γ d'annihilation triple

Si la paire positon-électron s'annihile au repos dans le système du laboratoire ($V=0$) les trois photons sont émis dans le même plan. L'angle de divergence par rapport à ce plan est de l'ordre de $\frac{V}{c}$ pour une paire dont la vitesse du centre de masse est V .

CHAPITRE II - ETATS LIES ELECTRON-POSITON : POSITONIUM

Avant de s'annihiler, un positon et un électron peuvent s'attirer par interaction électro-magnétique, pour former un système lié stable. Un tel système suggéré par Mohorovicic [16] fut baptisé positronium par Ruark* [17]. Il est symbolisé par Ps. D'autres systèmes "poly-électrons" tels que $2e^+ + e^- = Ps_2^+$ et $Ps_2 = 2e^+ + 2e^-$, $Ps^- = 2e^- + e^+$ peuvent aussi théoriquement exister avec des énergies de liaison de l'ordre de 0,1 à 0,2 ev, [11, 18 à 20], mais ils n'ont jamais été identifiés.

Le positon peut encore former des états liés dynamiquement stable ou métastables avec des ions ou des molécules (Composés de Wheeler [11]) :

$$XP_s = X^- e^+, \quad XP_s^+ = X e^+$$

II.1 - Propriétés du Positonium

Les états du positonium sont très similaires à ceux de l'atome d'hydrogène, mais un atome d'hydrogène dans lequel la masse réduite de l'électron serait deux fois plus faible. Il en résulte que toutes les énergies sont réduites d'un facteur 2 tandis que les dimensions linéaires des fonctions d'ondes sont augmentées d'un facteur 2.

Ainsi l'énergie du $n^{\text{ième}}$ état est :

$$E_n = \frac{e^4 m}{4\hbar^2 n^2},$$

Le potentiel d'ionisation est de 6,8 V, l'énergie du premier état excité est de 5,1 ev, la raie α Lyman est déplacée vers le rouge d'un facteur 2 et le rayon de Bohr $a_{Ps} = 2 a_o = 1,06 \text{ \AA}$ est le double de celui de l'atome d'hydrogène. A remarquer cependant que pour la cinétique des gaz, la section efficace du Ps est égale à celle de l'atome d'hydrogène.

* L'appellation Positonium dérivée de positon paraît plus appropriée.

Il existe deux états fondamentaux ($n = 1$) du positonium : l'état triplet $1 S_3$ ou orthopositonium (O-Ps) dans lequel les spins de l'électron et du positon sont parallèles et l'état singulet $1 S_0$ ou para-positonium (p-Ps) dans lequel les spins sont anti-parallèles.

L'appellation triplet ne correspond pas ici à un état atomique triplet, elle reflète seulement l'orientation des spins et rappelle l'annihilation à 3γ .

Le p-Ps est unique $J_s = 0$, $m = 0$, alors que l'O-Ps ($J_t = 1$) possède trois sous états avec des nombres quantiques magnétiques différents : $m = +1, 0, -1$.

Le poids statistique de l'état triplet ($2J_t + 1$) est trois fois plus grand que celui de l'état singulet ; l'orthopositonium sera donc formé dans 75 % des cas et le para-positonium dans 25 %.

Les règles de sélection imposent des processus d'annihilation différents pour ces deux états ; le p-Ps s'annihilera avec émission de deux γ , l'O-Ps avec émission de 3 γ .

Le taux d'annihilation du p-Ps est de :

$$\lambda_{p-P_s} = \pi r_o^2 c \left| \psi_-(\vec{r}_+) \right|^2 \quad (10)$$

où $\left| \psi_-(\vec{r}_+) \right|^2$ est la densité de la fonction d'onde de l'électron à la position $\vec{r}_+$ du positon.

Dans un atome libre de positonium :

$$\left| \psi_-(\vec{r}_+) \right|^2 = \frac{1}{8 \pi n^3} \left(\frac{me^2}{\hbar^2} \right)^3 \quad (11)$$

soit dans un état fondamental ($n = 1$) :

$$\lambda_{p-P_s} = 8.10^9 \text{ sec}^{-1} \quad (12)$$

$$\text{d'où une vie moyenne de } \tau_{p-P_s} = 1,25.10^{-10} \text{ sec.} \quad (13)$$

Le taux de désintégration de l'O-Ps d'après (5) est de :

$$\lambda_{O-P_s} = \frac{1}{1116} \lambda_{p-P_s} \quad (14)$$

soit pour le fondamental une vie moyenne de :

$$\tau_{O-P_s} = 1,4.10^{-7} \text{ sec} \quad (15)$$

11.2 - Structure fine et effet Zeeman [12, 21 à 23]

La structure fine du positonium se caractérise par le fait que des termes qui correspondent à la structure hyperfine pour l'hydrogène (interaction magnétique spin-spin entre les particules (a)) sont du même ordre de grandeur que ceux décrivant la structure fine. En outre l'interaction relativiste orbite-orbite entre les particules n'est plus négligeable (b). Enfin il existe un type d'interaction de spin supplémentaire absent dans l'hydrogène, provenant de la possibilité d'annihilation et re-crédation virtuelle de la paire pour les états pairs de conjugaison de charges (c).

La séparation des niveaux qui en résulte est particulièrement prononcée pour les états fondamentaux dont l'énergie du niveau triplet se trouve augmentée de :

$$\Delta W_T = \frac{32}{3} M \mu^2 (\Psi(0))^2 \quad (a \rightarrow \frac{8M}{3} \text{ et } c \rightarrow 8M)$$

alors que celle du niveau singulet est au contraire abaissée de $\Delta W_S = -8M \mu^2 (\Psi(0))^2$, (a $\rightarrow$ 8M) soit une séparation de $\Delta W = \frac{56}{3} M \mu^2 (\Psi(0))^2 = 8,4 \cdot 10^{-4} \text{ ev}$ (16) pour le positonium libre.

Cette séparation des niveaux peut être accentuée par l'action d'un champ magnétique (figure 4) qui mélange les sous états singlet et triplet ($m = 0$) du Ps.

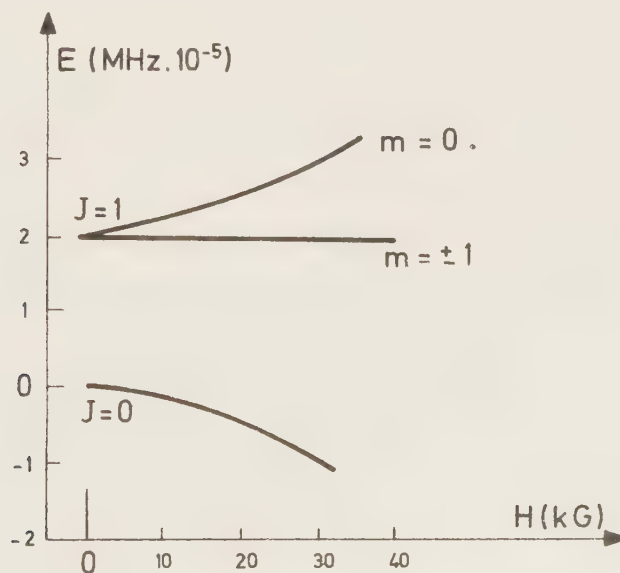


Fig. 4 - Séparation des niveaux du positonium dans un champ magnétique

L'énergie de perturbation $-\mu H$ n'affecte pas les niveaux $m = \pm 1$.

La variation d'énergie des niveaux $m = 0$ provoquée par le mélange singlet-triplet est par rapport aux niveaux initiaux de :

$$\Delta W_F = \frac{\Delta W}{2} (1 + x^2)^{1/2} \quad (17)$$

$$\text{où } x = \frac{2 e \hbar}{mc} \times \frac{H}{\Delta W} = \frac{4 \mu H}{\Delta W}$$

Dans des champs magnétiques suffisamment forts le bon nombre quantique n'est plus le spin du positonium mais le nombre quantique magnétique ($m = \pm 1$ pour l'émission de 3 γ et $m = 0$ pour l'émission de 2 γ). Les poids des processus d'annihilation à 2 γ et 3 γ qui pour le positonium libre sont respectivement $\frac{1}{4}$ et $\frac{3}{4}$ deviennent alors tous deux égaux à $\frac{1}{2}$.

En plus de l'effet direct du champ magnétique, la probabilité d'annihilation à 3 γ peut se trouver encore diminuée en induisant des transitions dipolaires magnétiques ($m = \pm 1 \rightarrow m = 0$) dans un champ électro-magnétique haute-fréquence pour une fréquence de résonance de :

$$\nu_r = \frac{\Delta W}{2\hbar} (\sqrt{1 - x^2} - 1) \quad (18)$$

II.3 - Formation et destruction du Positonium

II.3.1 - Formation du positonium

Les conditions énergétiques de formation du positonium ont été pour la première fois discutées par Ore [10] dans le cas des gaz et cette analyse peut s'appliquer avec une très légère modification à la formation dans les solides [24].

Dans un gaz, la probabilité de formation du positonium ne sera importante que si le système atome-ionisé + positonium est énergétiquement plus favorable que l'excitation de l'atome.

Si donc le premier état excité V_1 du gaz est séparé du potentiel d'ionisation V_i de plus de 6,88 eV, la probabilité d'excitation sera très grande et il y aura peu de positonium formé (figure 5 a) ; si au contraire le niveau excité est très proche du potentiel

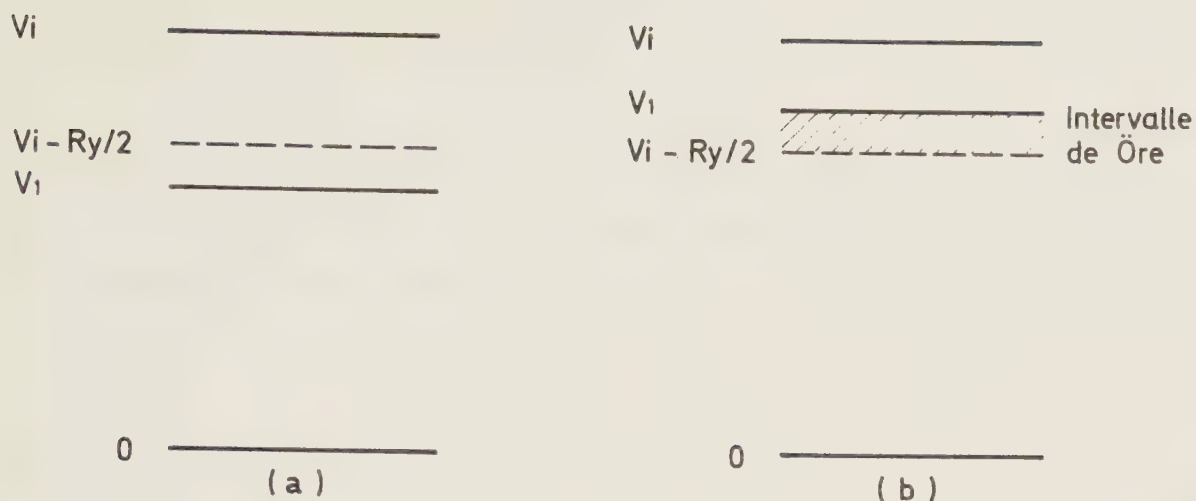


Fig. 5 - Diagramme de Öre

d'ionisation la capture d'un électron par des positons d'énergie cinétique comprise entre V_1 et $V_i - 6,8$ (intervalle de Öre) pour former du P_s sera plus probable que l'excitation (figure 5 b). Pour des positons d'énergie supérieure à V_i , l'ionisation est plus probable que la formation de positonium. Si cependant un tel atome rapide de positonium était créé, il serait détruit par collision [11] pour donner un positon de moindre énergie et un électron libre.

Dans un solide, ce n'est plus le potentiel d'ionisation mais la base de la bande de conduction V_c qui détermine l'énergie maximum des positons pouvant former du positonium susceptible de ne pas être détruit par collision. Ce niveau d'énergie fournit donc la limite supérieure de l'intervalle de Öre.

Un atome de P_s créé à partir d'un positon d'énergie supérieure à V_c sera détruit par collision pour donner un positon plus lent et un électron excité dans la bande de conduction. La condition énergétique de Öre qui doit nécessairement être satisfaite pour que la formation de P_s soit possible dans un solide s'écrit :

$$\frac{1}{2} Ry + \chi_{P_s} - \chi_{e^+} - \chi_{e^-} \geq 0 \quad (19)$$

où χ_{Ps} , χ_e^+ et χ_e^- = $V_i - V_c$ représentant respectivement les énergies de liaison du positonium, du positon et de l'électron avec le cristal et $\frac{1}{2} Ry$ l'énergie de liaison du positonium libre.

Cette condition n'est cependant pas suffisante pour que la formation de Ps soit effective, il faut encore que le taux de formation du Ps, Γ_{Ps} , soit très supérieur à l'inverse du temps de ralentissement, ζ_{Ore} , nécessaire au positon pour traverser l'intervalle de Ore.

$$\Gamma_{Ps} \cdot \zeta_{ORE} \gg 1 \quad (20)$$

Dans les cristaux moléculaires où n'existe pas de bande vide très éloignée de V_i , $V_c \neq V_i$, la formation de Ps sera énergétiquement permise.

Dans les cristaux ioniques où $V_i > V_c$ et où χ_e est élevée la condition de Ore n'est pas satisfaite, de même dans les métaux où l'énergie de liaison du Ps est inférieure à $\frac{Ry}{2}$ en raison de l'effet d'écran du à la grande densité électronique.

Cette analyse n'est rigoureuse que pour un cristal parfait. En effet, si du fait du désordre la bande de conduction disparaît, la formation de Ps est autorisée dès que l'énergie du positon atteint la valeur du potentiel d'ionisation. D'autre part dans certains défauts du réseau peuvent exister des électrons faiblement liés au cristal avec lesquels le positon pourra former du Ps. Une fois formé le Ps peut, soit vivre librement, soit être détruit ou transformé par interaction avec le milieu.

11.3.2 - Phénomène de "pick-off" [25, 26]

Dans un solide, l'interaction du Ps est proportionnelle au degré de recouvrement de la fonction d'onde du Ps avec la fonction d'onde du réseau. Dans ce domaine de

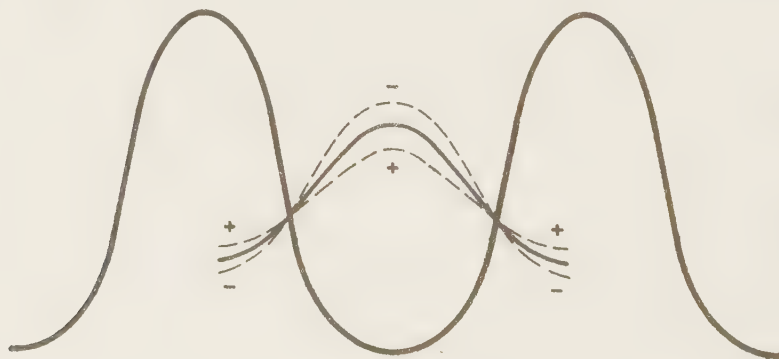


Fig. 6 - Illustration du recouvrement des fonctions d'onde du Ps et d'un réseau cristallin à l'origine du processus de pick-off

recouvrement, le positon verra une grande densité électronique supérieure à celle créée par l'électron avec lequel il est lié dans le Ps. Il possèdera alors une certaine probabilité de s'annihiler librement avec l'un des électrons du milieu, annihilation par "pick-off", avec émission de deux photons γ . Le recouvrement des fonctions d'onde et donc le taux de pick-off dépendra directement dans ce cas des paramètres du réseau.

Le même mécanisme d'annihilation par pick-off peut être provoqué au cours des collisions que subit le Ps dans un gaz ou un liquide de la part des atomes du milieu.

Le pick-off a peu de chance d'affecter l'annihilation libre du p-Ps ; il constituera un mécanisme d'annihilation non négligeable de l'O-Ps dont le temps de vie pourra être sensiblement abrégé.

II.3.3 - Annihilation par "Quenching" [27,28,29]

Un atome de O-Ps tout en conservant sa nature de Ps peut au cours d'une collision échanger son électron avec un électron célibataire d'une molécule paramagnétique (NO, NO₂, O₂ ...).

Cet échange peut s'effectuer avec ou sans retournement de spin de l'électron du Ps.

Dans le premier cas l'O-Ps pourra être converti en p-Ps qui s'annihilera avec sa vie caractéristique. Il en résultera une diminution de la vie-moyenne de l'O-Ps.

Une collision sans retournement de spin laissera l'O-Ps inchangée elle s'écrira :

$$\alpha \Psi_t^+ = \uparrow \uparrow \uparrow \Rightarrow D \uparrow \uparrow \uparrow - E \uparrow \uparrow \uparrow = (D-E) \alpha \Psi_t^+$$

alors qu'une collision avec retournement de spin s'écrira :

$$\beta \Psi_t^+ = \downarrow \uparrow \uparrow \Rightarrow D \downarrow \uparrow \uparrow + E \uparrow \downarrow \uparrow = D \beta \Psi_t^+ + \sqrt{\frac{1}{2}} E \Psi_t^0 - \sqrt{\frac{1}{2}} E \alpha \Psi_s$$

où D et E désignent les amplitudes d'interaction directe et d'échange

α et β les fonctions de spin de l'électron célibataire, Ψ_t^+ la fonction d'onde de l'O-Ps avec le spin en "haut", Ψ_s la fonction d'onde du p-Ps et $\Psi_t^0 = \frac{1}{\sqrt{2}} (\uparrow \downarrow + \downarrow \uparrow)$.

II.4 - Identification du positonium

En résumé la formation de Ps est caractérisée par l'annihilation à 3 γ de son état ortho qui peut se manifester par les propriétés suivantes :

$$- \frac{P_{3\gamma}}{P_{2\gamma}} \gg \frac{1}{372}$$

- Existence d'un spectre continu d'énergie de photons
- Taux d'annihilation = λ_{oPs}
- Effet Zeeman
- Conversion ortho-para provoquée par les molécules para-magnétiques (NO, O₂)
- Polarisation des trois gamma d'annihilation

La vérification expérimentale de deux de ces propriétés est en pratique suffisante pour établir irréfutablement l'existence de Ps dans un milieu.

CHAPITRE III - METHODES EXPERIMENTALES D'OBSERVATION DE L'ANNIHILATION DU POSITON

Les principaux paramètres accessibles par détection des quanta d'annihilation sont :

- (1) Le temps de vie du positon avant annihilation
- (2) La corrélation angulaire des annihilations à 2 γ
- (3) La probabilité d'annihilation à 3 γ .

Ces trois types de mesures font appel en général à des techniques de coïncidences, respectivement entre un γ d'annihilation et un γ émis au même instant que le positon (1) et entre les 2 γ ou les 3 γ d'annihilation (2), (3).

III.1 - Mesure du temps de vie du positon [30,31,32]

Les γ d'annihilation fournissent dans le temps, une information précieuse : ils marquent avec précision l'instant de disparition du positon. Si l'on est capable de fixer avec précision l'instant de sa création, il suffira de mesurer l'espace de temps séparant ces deux informations pour connaître la durée de vie du positon. L'information concernant la naissance du positon est fournie par un photon gamma émis en même temps que le positon au cours d'une désintégration β^+ . La source la plus pratique pour cette mesure est le Na^{22} où un gamma de 1,28 MeV est émis en cascade avec le β^+ à partir d'un niveau excité dont le temps de vie est de l'ordre de 10^{-12} s.

Ce temps est du même ordre de grandeur que le temps nécessaire au positon pour se thermaliser.

Le retard qu'il est nécessaire d'introduire pour détecter en coïncidences le de 1,28 MeV et l'un des γ d'annihilation mesurera donc le temps de vie du positon thermalisé.

Quand le processus d'annihilation est unique avec un taux d'annihilation λ , la loi de répartition dans le temps des annihilations s'écrit :

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N = -\lambda N_0 e^{-\lambda t} \quad (21)$$

S'il existe par contre différents processus d'annihilation avec des taux λ_{ν} , le spectre des temps d'annihilation sera complexe :

$$\frac{dN}{dt} = \sum -\lambda_{\nu} N_0 e^{-\lambda_{\nu} t} \quad (22)$$

Par exemple, pour un corps où se forme du positonium, l'O-Ps s'annihilera à un taux λ_{O-Ps} , le p-Ps à un taux λ_{p-Ps} et les positons qui n'ont pas formé de positonium s'annihilent librement avec un taux λ_1 . L'équation (22) s'écrit alors :

$$\frac{dN}{dt} = N_0 \left[P \left(\frac{\lambda_{p-Ps}}{4} e^{-\lambda_{p-Ps} t} + \frac{3 \lambda_{O-Ps}}{4} e^{-\lambda_{O-Ps} t} \right) + (1-P) e^{-\lambda_1 t} \right] \quad (23)$$

où P représente la fraction de positons qui forment du Ps.

Si pour l'O-Ps, il y a compétition entre l'annihilation libre et un deuxième processus d'annihilation, par exemple de pick-off, le taux d'annihilation de l'O-Ps sera supérieur à λ_{O-Ps} :

$$\frac{dN}{dt}_{O-Ps} = \frac{3 N_0 P}{4} (\lambda_{O-Ps} + \lambda_p) e^{-(\lambda_{O-Ps} + \lambda_p) t} \quad (24)$$

où λ_p représente le taux d'annihilation par pick-off.

Expérimentalement, le spectre de temps de vie mesuré $F(t)$ ne représente pas exactement la densité de probabilité $H(t) = \frac{dN}{dt}$ pour qu'un positon s'annihile à l'instant t .

Du fait de la résolution finie en temps du système de détection, la probabilité d'enregistrer à l'instant t une annihilation survenue à un instant $t' \neq t$ n'est en effet pas nulle.

Si l'on nomme $P(t)$ la densité de probabilité pour détecter au temps t une annihilation instantanée, c'est-à-dire en $t = 0$, la courbe $F(t)$ effectivement enregistrée sera :

$$F(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} H(t') P(t-t') dt' \quad (25)$$

Dans le cas d'un seul mécanisme d'annihilation :

$$H(t') = 0 \text{ pour } t' < 0$$

$$H(t') = \lambda e^{-\lambda t'} \text{ pour } t' \geq 0$$

$F(t)$ peut alors s'exprimer comme :

$$\frac{d(\ln F(t))}{dt} = -\lambda \left[1 - \frac{P(t)}{F(t)} \right] \quad (26)$$

Il apparaît clairement sur cette expression que pour $\frac{P(t)}{F(t)} \ll 1$ la courbe obtenue pour $F(t)$ est une droite en représentation semi logarithmique de pente $-\lambda$. La vie moyenne du positon $\zeta = \frac{1}{\lambda}$ pourra donc être directement calculée à partir de la pente de cette droite. Quand il existe plusieurs processus d'annihilation cette méthode de la pente permettra d'analyser successivement les différentes vies moyennes à partir des droites, correspondant à chacun de ces processus, présentes dans le spectre. Deux spectres de temps de vie l'un simple et l'autre complexe sont représentés Figure 7.

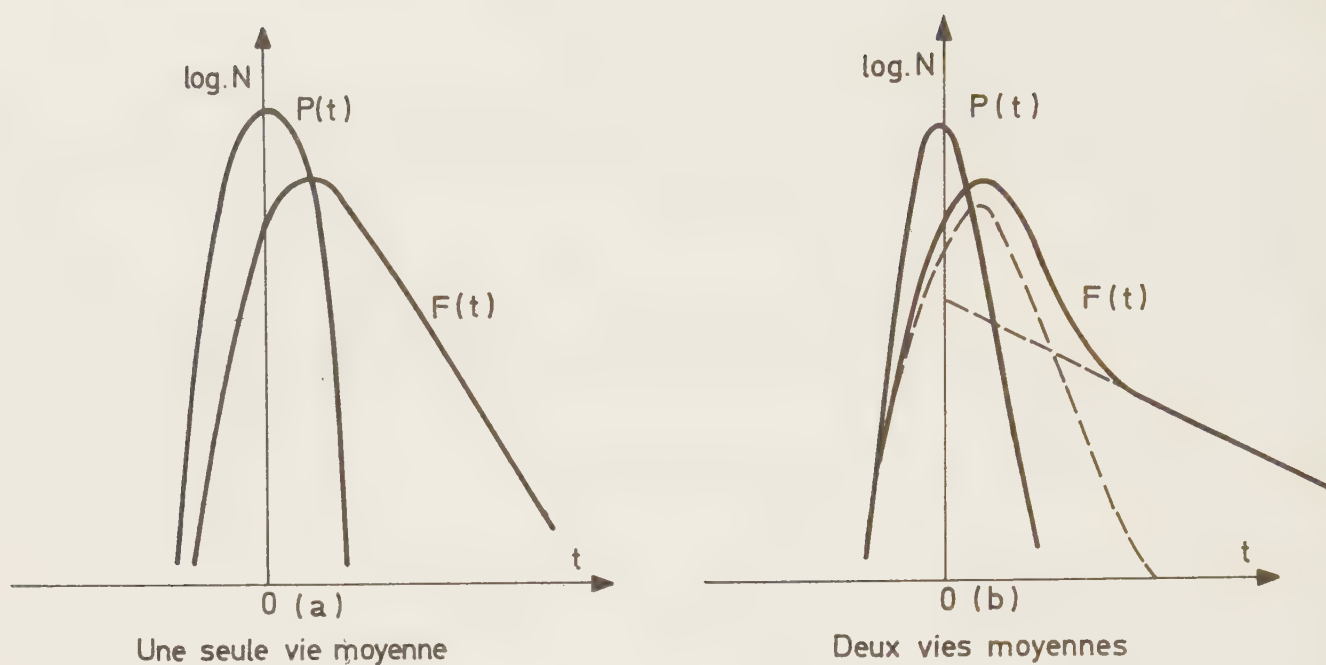


Fig. 7 - Spectres de vie du positon $F(t)$ et courbe de résolution $P(t)$

Outre les valeurs des vies moyennes τ_{ν} , la méthode de la pente permet encore de déterminer les intensités relatives I_{ν} des divers processus d'annihilation. Le nombre total d'événements enregistrés par chaque processus est en effet directement proportionnel à la surface s_{ν} située sous la droite qui lui correspond dans le spectre de temps de vie. Si l'on suppose que l'efficacité de détection est constante pour tous les processus, I est donc fourni par :

$$I_{\nu} = \frac{s_{\nu}}{\sum_{\nu} s_{\nu}} \quad (27)$$

Or :

$$s_{\nu} = \left(\frac{dN_{\nu}}{dt} \right)_{t=0} \times \tau_{\nu} = N_{0\nu} \lambda_{\nu} \tau_{\nu} \quad (28)$$

il suffit donc d'extrapoler la droite correspondant à la composante ν dont l'ordonnée à l'origine est $N_{0\nu} \lambda_\nu$ pour calculer s_ν et donc l_ν . Cependant quand ζ_ν est de l'ordre de grandeur de la résolution cette méthode surestime l_ν .

D'une manière générale l'ordonnée à l'origine ne mesure pas en réalité $N_{0\nu} \lambda_\nu$ mais $\lambda_\nu N_{0\nu} e^{+\frac{\sigma^2}{2\zeta_\nu^2}}$. Si l'on approxime la courbe de résolution à une Gaussienne d'écart type σ , $F(t)$ s'écrit en effet :

$$F(t) = \lambda_\nu e^{-\lambda_\nu t} \cdot e^{\frac{\sigma^2 \lambda_\nu^2}{2}} \quad (29)$$

et

$$\int_0^\infty F(t) dt = e^{\frac{\sigma^2 \lambda_\nu^2}{2}} \int_0^\infty \lambda_\nu e^{-\lambda_\nu t} dt \quad (30)$$

Une autre méthode pour mesurer une vie moyenne consiste à évaluer le déplacement de l'abscisse du centre de gravité de la courbe retardée $F(t)$ par rapport à la courbe "prompte" $P(t)$. A l'aide des transformées de Fourier on montre aisément que pour une seule vie moyenne :

$$\zeta = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} t F(t) dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} F(t) dt} - \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} t P(t) dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} P(t) dt} = M_1(F) - M_1(P) \quad (31)$$

Cette méthode est très sensible aux dérives de l'électronique, ce qui limite fortement son intérêt. D'autre part elle n'est vraiment pratique que pour analyser une seule vie moyenne.

III.2 - Corrélation angulaire des annihilations à 2γ [33,34,35]

Le ralentissement du positon dans la matière est de l'ordre de 10^{-12} s. et la probabilité d'annihilation en vol est faible, si bien que la plupart des positons ne s'annihilent par collision qu'après thermalisation. La divergence angulaire $\Delta\varphi$ (ou la différence d'énergie) des 2γ d'annihilation est donc exclusivement provoquée par la quantité de mouvement de l'électron. Pour un électron de 1 ev cette divergence est de l'ordre de 1 milliradian.

La corrélation angulaire mesurée avec une résolution ≤ 1 mr permettra donc de déterminer la quantité de mouvement des électrons.

En pratique, ce n'est pas la quantité de mouvement $\vec{k}$ qui est directement mesurée, mais sa projection $\vec{k}_z$ sur un axe perpendiculaire au plan de détection :

$$N(k_z) = N\left(\frac{mc}{\hbar} \theta\right) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \rho(\vec{k}) dk_x dk_y \quad (32)$$

De la courbe de corrélation, il est ensuite aisé de remonter à la distribution en énergie des électrons qui se sont annihilés. Si $\rho(\vec{k})$ est une fonction isotrope, on montre que :

$$\rho(k) = C^{te} \frac{1}{k_z} \frac{dN(k_z)}{dk_z}$$

Pour un gaz d'électron libre la courbe de corrélation obtenue est une parabole :

$$\frac{dN}{d\theta} = C^{te} (\theta_F^2 - \theta^2 m^2 c^2) \quad (33)$$

s'annulant à un angle $\theta = \theta_F$ qui correspond à un électron situé à la surface de la mer de Fermi dont l'énergie peut être ainsi mesurée.

La corrélation angulaire permet en outre d'évaluer la proportion de p-Ps formé, information très difficile à obtenir par la méthode des temps de vie. La présence de p-Ps se manifeste, en effet, par un pic étroit qui vient se superposer à la distribution plus étalée due à l'annihilation libre du positon [36,37] (figure 8). La surface de ce pic rapportée à la surface totale fournit la proportion de p-Ps formé.

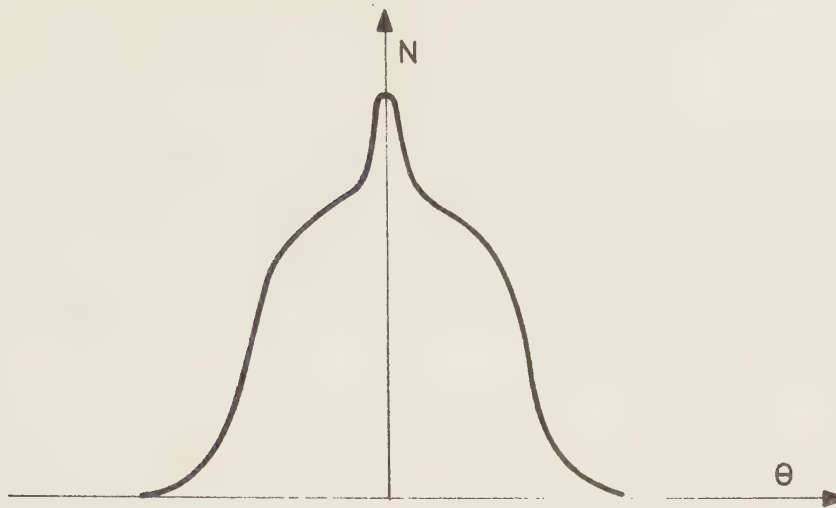


Fig. 8 - Corrélation angulaire des γ résultant de l'annihilation du positon dans un milieu où se forme du positronium

La largeur à mi-hauteur de ce pic est égale à la résolution angulaire de l'appareillage si le p-Ps s'annihile thermalisé. Si le p-Ps, confiné dans un puits de potentiel, possède une quantité de mouvement $\langle p \rangle$ supérieure à la résolution la largeur à mi-hauteur permet d'estimer l'ordre de grandeur de $\langle p \rangle$.

III.3 - Détermination de la probabilité d'annihilation à 3 γ

La détermination directe du taux d'annihilation à 3 γ^* peut être réalisée en détectant en coïncidence à l'aide de détecteurs à scintillation convenablement collimatés, les 3 γ émis à 120° dans un même plan [38,39]. Un tel montage permet en outre de mesurer la distribution angulaire des 3 γ émis en variant les angles que font entre eux les différents détecteurs et les énergies sélectionnées par les voies lentes.

Il existe d'autres méthodes moins directes [40,41] pour déterminer la probabilité d'annihilation à 3 γ , par exemple l'étude du spectre des électrons produits dans la détection γ dans un scintillateur ou un détecteur à semi-conducteur (Ge (Li)).

Les γ émis dans un processus à deux quantas ont une énergie bien définie, de 510 Kev, alors que l'annihilation à 3 γ présente un spectre γ d'énergie continu. Le spectre d'amplitude observé dans la détection de photons γ de 510 Kev est formé d'un pic (absorption totale) séparé d'un spectre continu (palier Compton), d'énergie maximum $E_c = \frac{2}{3} mc^2 = 340 \text{ Kev}$, par une vallée.

Celui de γ issus de processus d'annihilation à 3 γ est formé d'un spectre continu d'absorption totale de 510 kev à 0 auquel se superpose un second spectre continu à partir de 340 Kev (Spectre Compton). La comparaison du spectre d'amplitude de γ de 510 Kev purs avec un spectre comportant des processus à 3 γ , mesuré dans les mêmes conditions, permet donc de déterminer le taux d'annihilation à 3 γ qui se traduit par une perte de coups au pic et un nombre plus élevé d'évènements détectés dans la vallée.

La probabilité d'annihilation à 3 γ s'exprime en fonction de la probabilité de formation du positonium par :

$$P_{3\gamma} = \frac{3}{4} P \frac{\tau}{\tau_{oPs}} + \frac{1}{372} (1 - P) \quad (34)$$

ou $\tau_{oPs} = 1,4 \cdot 10^{-7} \text{ s}$ et τ est la vie moyenne de l'o-Ps dans le milieu.

Une décroissance de $P_{3\gamma}$ peut donc être provoquée soit par une inhibition de la formation du positonium ($P \downarrow$) soit par une augmentation du taux d'annihilation ($\tau \downarrow$). Par la mesure directe de $P_{3\gamma}$ il est impossible de distinguer les contributions de ces deux causes et c'est là une faiblesse de cette méthode.

CHAPITRE IV - ANNIHILATION DU POSITON DANS LES CRISTAUX IONIQUES

Au moyen des diverses méthodes que nous venons de décrire les caractéristiques de l'annihilation du positon ont été étudiées pour une grande variété de corps. Ces recherches ont servi à établir ou vérifier les propriétés du positon et du positonium exposées dans les deux premiers chapitres. Elles ont en outre permis de définir comment la nature et l'état physique du milieu sont susceptibles d'influer sur ces propriétés. Il apparaît que le Ps se forme dans la plupart des gaz, liquides et solides moléculaires tandis que dans les métaux, semi-conducteurs et cristaux ioniques sa formation est interdite.

En général l'annihilation libre du positon et éventuellement son annihilation après formation de Ps suffisent à expliquer les principaux processus d'annihilation observés expérimentalement. Toutefois dans les cristaux ioniques tous les résultats ne peuvent être interprétés simplement à l'aide de ces deux phénomènes.

IV.1 - Halogénures alcalins

L'expérience confirme qu'il ne se forme pas de Ps dans les halogénures alcalins. La probabilité d'annihilation à trois gammas mesurée est en effet celle qui caractérise l'annihilation libre du positon. De plus la composante étroite révélatrice de la présence de p-Ps n'apparaît pas dans les courbes de corrélation angulaire.

Cependant l'annihilation libre n'est pas le seul processus par lequel le positon est susceptible de s'annihiler. La nature complexe du spectre de temps de vie prouve en effet l'existence de deux processus d'annihilation distincts [42].

Si la vie moyenne la plus brève ($\simeq 0,2$ ns) peut être identifiée à l'annihilation libre du positon, la composante lente ($\simeq 0,5$ à $0,7$ ns), qui ne résulte pas de la formation de Ps, révèle donc un mécanisme d'annihilation original.

Cette composante a tout d'abord été interprétée comme une conséquence de la formation d'un état lié du positon avec un ion négatif ; mais la valeur de la vie moyenne du positon calculée pour un tel état lié est inférieure d'un facteur dix à la vie mesurée et il est nécessaire de supposer que cet état lié est toujours formé dans l'un de ces états excités pour obtenir un ordre de grandeur cohérent [43].

Que près de 50 % des positons dans certains cristaux se lient à un ion négatif pour former un atome dans un état excité ne semble pas très réaliste. Beaucoup plus convaincante est l'hypothèse avancée par Brandt [44] qui attribue cette vie au piégage du positon dans certains défauts du cristal. Cette hypothèse vient d'être récemment confirmée par une série d'expériences qui montre que l'intensité de la composante lente diminue après irradiation du cristal aux rayons X et qu'elle revient à sa valeur initiale à la suite d'un blanchiment thermique qui élimine les centres colorés créés par l'irradiation [45].

IV.2 - Oxydes alcalino-terreux

L'existence d'une vie longue de l'ordre de 3 ns est aussi signalée par Bussolati et Zappa [46] dans des échantillons poly-cristallins d'oxydes alcalino-terreux ; mais contrairement aux halogénures alcalins, les pourcentages de 3 γ mesurés de 1 à 6 %, sont nettement supérieurs à ceux résultant de l'annihilation libre. Dans ce cas il n'est donc pas impossible qu'une fraction des positons forme de l'O-Ps avant de s'annihiler. Cependant les probabilités d'annihilation à 3 γ mesurées ne concordent pas avec celles calculées à partir de l'intensité et la vie moyenne de la composante lente, supposée représenter l'annihilation de l'O-Ps. En outre, l'absence de vie longue dans un monocristal d'oxyde de béryllium [47] confirme que la formation de Ps est interdite dans un cristal ionique. La présence de Ps dans un autre cristal ionique est encore rapportée par

Løvseth [48] qui met en évidence une composante étroite dans la corrélation angulaire des γ d'annihilation issus d'échantillons poly-cristallins d'alumine. L'abondance de cette composante étroite est sensible à l'atmosphère gazeuse de la poudre, en particulier à l'oxygène. Ces différents auteurs suggèrent en conclusion que le Ps observé est sans doute formé dans le gaz adsorbé en surface et non pas dans le solide. Une telle interprétation qui a le mérite de concilier l'interdiction de formation de Ps dans les cristaux ioniques avec l'observation de Ps dans l'alumine et les oxydes alcalino-terreux ne paraît pas très satisfaisante.

C'est dans le but d'expliquer l'origine réelle de ce phénomène que nous avons entrepris l'étude systématique de l'annihilation du positon dans les oxydes en poudre.

DEUXIEME PARTIE

CHAPITRE I - DESCRIPTION DE L'APPAREILLAGE

- I.1 - Banc de traitement thermique et préparation des sources
- I.2 - Dispositif de détection et montage électronique
- I.3 - Vérification de l'appareillage

CHAPITRE II - PRECISION DES MESURES ET ECHANTILLONS

- II.1 - Précision des mesures
- II.2 - Caractéristiques des échantillons

CHAPITRE III - RESULTATS EXPERIMENTAUX

- III.1 - Temps de vie du positon dans les oxydes alcalino-terreux et différents autres types de poudre
- III.2 - Etude des conditions d'existence de ζ_3
- III.3 - Nature de la composante ζ_3
- III.4 - Influence de la surface

Une étude expérimentale systématique de l'annihilation du positon dans les poudres exige un certain nombre de précautions élémentaires. Une poudre est en effet un milieu hétérogène dans laquelle la matière est présente sous forme solide et gazeuse.

Pour distinguer le rôle joué respectivement par les grains de poudre et le gaz vis à vis de l'annihilation du positon il est donc impératif de concevoir un dispositif qui permette d'éliminer les gaz, non seulement le gaz atmosphérique mais aussi le gaz susceptible d'être adsorbé à la surface des grains.

Le chauffage à 1000°C sous vide des échantillons est nécessaire pour obtenir des grains de poudre exempts de gaz. Mais la source de positons ne peut subir sans dommages un tel traitement thermique aussi ne doit-elle être plongée dans la poudre qu'après refroidissement de l'échantillon.

Dans un solide présentant une densité de 2 g/cm^3 le parcours des positons émis par une source de Na^{22} est de 1 mm. Or la densité apparente minimum des poudres utilisées est de $0,05 \text{ g/cm}^3$. Pour que la fraction des positons qui s'annihilera dans les parois du récipient où est enfermée la poudre la moins dense soit négligeable il faudrait donc en principe qu'une épaisseur de 4 cm de poudre sépare la source de positons des parois. Mais dans ces conditions les détecteurs situés à plus de 4 cm de la source ne pourront enregistrer que les photons γ émis dans un petit angle solide.

Pour obtenir un taux de comptage raisonnable en dépit de la géométrie, il est d'autre part impossible d'augmenter l'activité de la source au dessus d'une certaine limite au delà de laquelle le nombre d'évènements fortuits enregistrés, directement proportionnels à l'activité, rendra la mesure par trop imprécise. Un compromis entre ces deux conditions s'avère donc nécessaire.

Le positionnement de la source au centre de l'échantillon est important pour éviter les annihilations parasites dans les parois. Celle-ci doit présenter une rigidité suffisante pour être extraite de la poudre durant le traitement thermique. Il faut enfin que le support de source possède une densité superficielle aussi petite que possible pour minimiser le nombre d'annihilations parasites dans la source et il doit être de nature métallique pour être certain qu'aucun des positons qui s'annihile dans ce support n'a pu former du Ps.

CHAPITRE I - DESCRIPTION DE L'APPAREILLAGE

I.1 - Banc de traitement thermique et préparation des sources

Le banc de traitement thermique, schématisé sur la Figure 9, a été conçu de manière à pouvoir traiter les échantillons sous vide secondaire jusqu'à une température de 1000°C. Un groupe de pompage, comportant une pompe à diffusion d'huile surmontée d'un piège à azote liquide permet d'obtenir une pression voisine de 10^{-6} mm de mercure dans une enceinte en pyrex reliée à un tube de quartz de 50 mm de diamètre. L'échantillon à traiter est placé au fond du tube de quartz. La pression peut être contrôlée avec un voyant à décharge et mesurée à l'aide d'une jauge à ionisation. La faible densité des échantillons exige un pompage très progressif pour éviter que la poudre ne soit aspirée dans la pompe. Cette faible vitesse de pompage est obtenue par un robinet de faible diamètre monté en dérivation sur le tube en pyrex. Dans cette dérivation est en outre placé un fritté poreux qui diminue encore la vitesse de pompage et sert à arrêter la poudre aspirée en cas de fausse manoeuvre. Quand l'intensité du voyant à décharge s'atténue le danger d'entraînement de la poudre disparaît. Il est alors possible de pomper à travers un robinet de gros diamètre monté directement sur le tube en pyrex. Après 4 à 5 heures de pompage secondaire un vide voisin de 10^{-6} mm de mercure peut ainsi être obtenu. L'échantillon est alors chauffé à l'aide d'un four mobile dans lequel, en position haute, plonge le tube de quartz. Si le chauffage de la poudre est progressif il n'est pas à craindre qu'un brutal dégazage provoque un entraînement de la poudre. Il n'en est pas de même pour un traitement thermique brutal où le four est positionné après avoir été préalablement chauffé à la température désirée. Il est prudent dans ce cas de réduire la vitesse de pompage avant de chauffer la poudre. La température de l'échantillon est mesurée par un thermo-couple dont la soudure baigne dans la poudre.

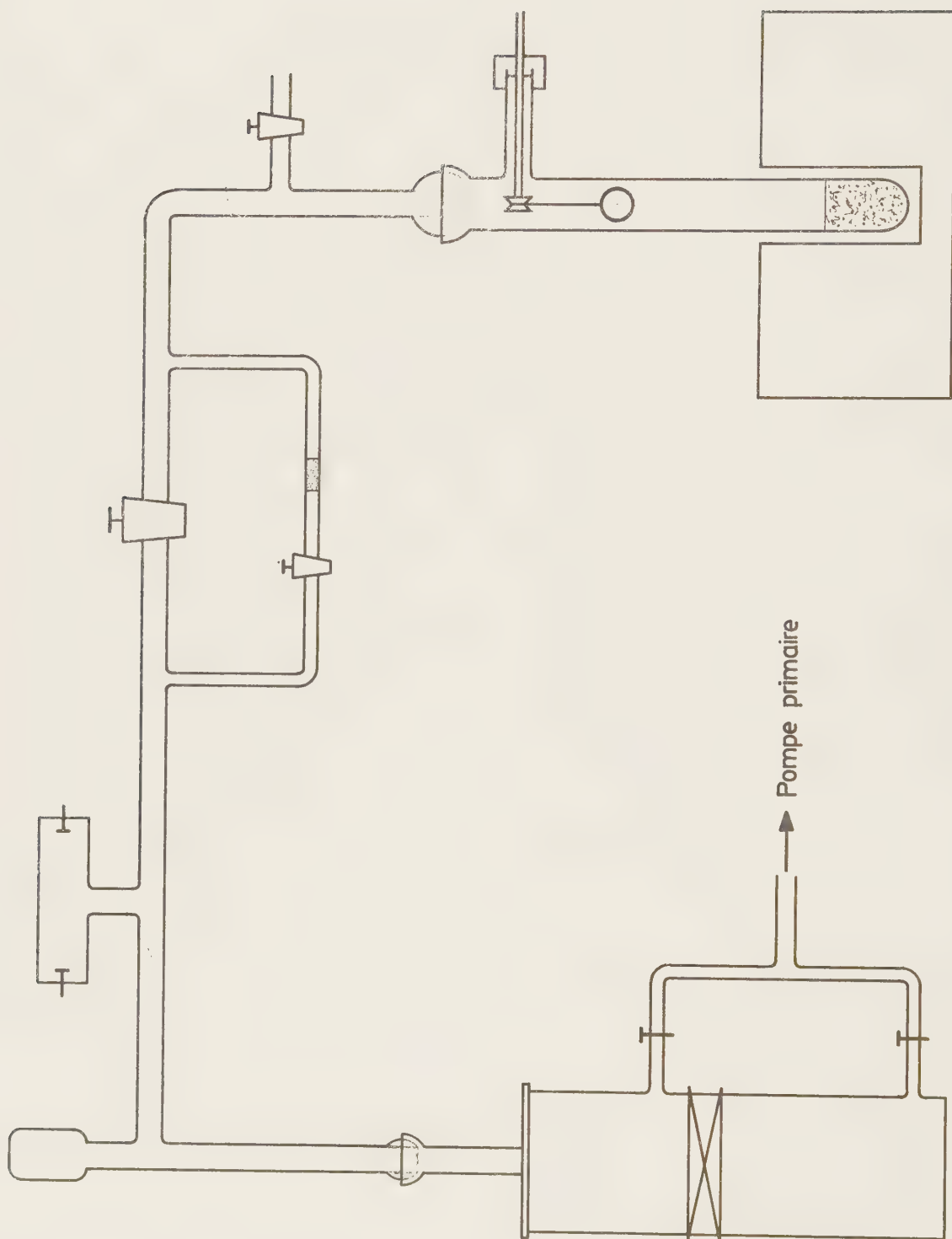


Fig. 9 - Banc de traitement thermique

La source de positons ne peut sans dommage être chauffée à près de 1000°C . Elle est suspendue par un fil à une poulie et sa position peut être variée sans casser le vide, à l'aide d'un joint tournant. Durant le traitement thermique la source est maintenue en position haute. Quand le traitement thermique est terminé, c'est à dire quand le vide dans l'enceinte est à nouveau voisin de 10^{-6} mm de mercure, le four est enlevé et l'échantillon refroidi brutalement à l'air comprimé jusqu'à la température ambiante ; la source est ensuite descendue et noyée au centre de la poudre. Les temps de vie sont alors mesurés au moyen de deux détecteurs disposés de part et d'autre du tube de quartz.

L'atmosphère de la poudre peut être modifiée en introduisant différents types de gaz par l'intermédiaire du robinet qui sert habituellement d'entrée d'air.

La pression du gaz, initialement de 1 atmosphère, est ensuite abaissée par pompage à travers le fritté. Elle est contrôlée à l'aide d'un manomètre qui se fixe sur l'entrée d'air.

Il est en outre possible d'effectuer des mesures de vies à différentes températures entre -200 et $+200^{\circ}\text{C}$.

A basse température le tube de quartz est plongé dans l'azote liquide ou dans un bain méthanol-carboglance contenu dans un vase en Sipror au contact duquel sont disposés les deux détecteurs.

Pour chauffer les échantillons on utilise un cylindre métallique rempli d'huile silicone. La partie inférieure de ce cylindre est placée à l'intérieur du four tandis que sa partie supérieure, isolée avec de l'amiante, vient entourer le tube de quartz qui se trouve ainsi immergé dans l'huile. Un second thermo-couple permet de mesurer la température de l'huile. Avec ce dispositif les détecteurs doivent être positionnés à au moins 2 cm du cylindre et refroidis en permanence par un jet d'air comprimé.

Préparation des sources

Les sources sont préparées en déposant à l'aide d'une micro-pipette quelques gouttes d'une solution neutre de chlorure de sodium 22 à $0,1\text{mcpar cm}^3$ sur une feuille d'aluminium épaisse de cinq microns. Après évaporation sous une lampe infra-rouge, le

dépôt actif est recouvert avec une deuxième feuille d'aluminium de même épaisseur. Les deux feuilles sont ensuite mises en contact étroit et maintenues tendues au moyen de deux anneaux métalliques qui s'emboîtent l'un dans l'autre. Les sources de 1 à $10\mu\text{c}$ ainsi confectionnées présentent alors une rigidité suffisante pour être manipulées sans dommage. L'étanchéité de feuilles d'aluminium d'une aussi faible épaisseur est d'assez courte durée et il est nécessaire de la vérifier avant chaque série de mesures.

La fraction des positons qui s'annihilent dans ces sources peut être estimée à environ 10 % [49]. L'intensité relative I d'une composante mesurée dans le spectre des vies par rapport au nombre total d'évènements détectés représente donc en réalité une intensité de $\frac{I}{0,9}$ par rapport au nombre total d'annihilations dans la poudre.

1.2 - Dispositif de détection et montage électronique

a) Détecteurs

Les détecteurs sont constitués par deux scintillateurs plastic entourés de papier d'aluminium et montés sur deux tubes photomultiplicateurs 56 AVP de caractéristiques très voisines. Un enroulement de ruban adhésif qui assure l'étanchéité à la lumière maintient le scintillateur en parfait contact optique contre la photo-cathode du photomultiplicateur. Dans le boîtier de chaque détecteur est placé un préamplificateur à cathode suiveuse pour adapter l'impédance des impulsions recueillies sur la dixième dynode.

b) Montage électronique

Les impulsions délivrées sous une impédance de 100Ω par l'anode des photomultiplicateurs (voies rapides) sont acheminées à travers des lignes à retard variable vers un convertisseur temps-amplitude de type départ-arrêt. Après mise en forme le retard séparant les deux impulsions commande le temps de charge d'une capacité. L'information en temps, ainsi transformée en amplitude, est ensuite analysée par un sélecteur 400 canaux. Le convertisseur qui présente une résolution électronique de 30 ps possède quatre gammes d'analyse de 50, 150, 300 et 600 nanosecondes.

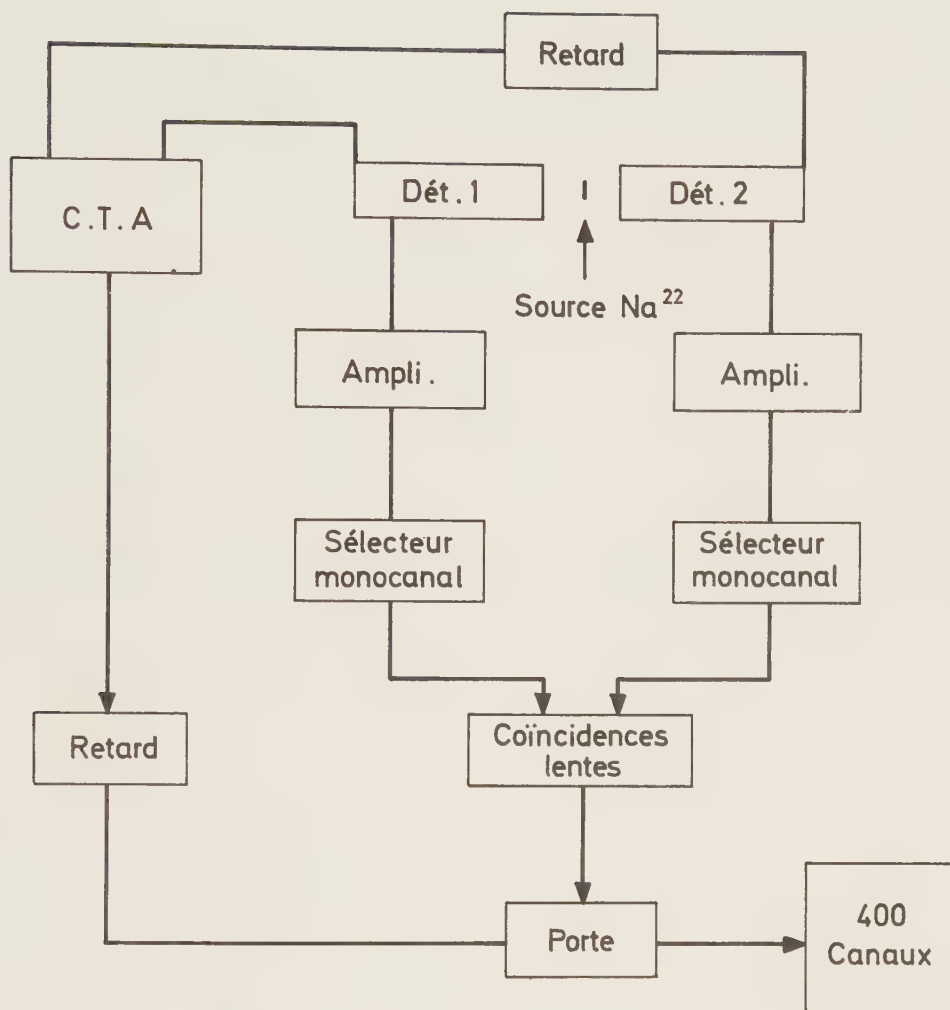


Fig. 10 - Schéma de principe du dispositif de détection rapide - lent.

Les mêmes impulsions recueillies en parallèle sur une dynode (voies lentes) sont amplifiées puis sélectionnées en amplitude à travers un sélecteur mono-canal. Elles sont ensuite mises en coïncidence lente ($\tau = 0,5 \mu s$). Si l'une de ces voies est réglée pour ne laisser passer que les signaux correspondant aux gammas nucléaires de 1,28 MeV et l'autre de manière à enregistrer principalement les gammes d'annihilation, il est ainsi possible de singulariser le rôle des détecteurs. L'ouverture de la porte du sélecteur 400 canaux est commandée par le circuit de coïncidence afin de n'analyser, parmi les signaux fournis par le convertisseur, que ceux résultant de la détection d'un gamma de 1,28 MeV par un détecteur et d'un gamma d'annihilation par l'autre. Le réglage des voies lentes visualisé sur le sélecteur multi-canaux est représenté figure 11. Avec un tel réglage, la résolution en temps mesurée à mi-hauteur avec une source de Co^{60} est de 1 ns. L'étalonnage en temps du convertisseur montre que la linéarité est inférieure à 2% sur des intervalles de 24 ns et 160 ns respectivement pour les gammes de 50 et 300 ns que nous avons utilisées. Un exemple de spectre de temps de vie, obtenu pour un étalonnage de 0,256 ns par canal est reproduit figure 12.

1.3 - Vérification de l'appareillage

Afin d'éprouver le bon fonctionnement de l'électronique nous avons mesuré les temps de vie du positon avant annihilation dans une série de corps déjà connus. Ces résultats présentés ci-dessous ont été obtenus par la méthode de la pente. Ils sont en bon accord avec ceux rapportés par Berko et Hereford [50] que nous indiquons en parallèle.

Nos résultats				Résultats rapportés réf. (50)			
$\tau_1 10^{-10}s$	$I_1(\%)$	$\tau_2 10^{-9}s$	$I_2(\%)$	$\tau_1 10^{-10}s$	$I_1(\%)$	$\tau_2 10^{-9}s$	$I_2(\%)$
Téflon 4,5 $\pm$ 0,5	85	3,1 $\pm$ 0,4	15	-	-	3,5 $\pm$ 0,4	30
Polystyrène 3,5 $\pm$ 0,5	74	2,1 $\pm$ 0,3	26	3,7 $\pm$ 0,5	64	2,3 $\pm$ 0,2	36
Aluminium 3,10 $\pm$ 0,5	100	-	-	1,5 $\pm$ 0,3	100	-	-
Polyéthylène 3,9 $\pm$ 0,5	74	2,0 $\pm$ 0,3	26	3,5 $\pm$ 0,5	71	2,4 $\pm$ 0,3	29
Quartz fondu 3,2 $\pm$ 0,5	68	1,59 $\pm$ 0,3	32	3,0 $\pm$ 0,5	71	1,8 $\pm$ 0,2	29

TABLEAU I

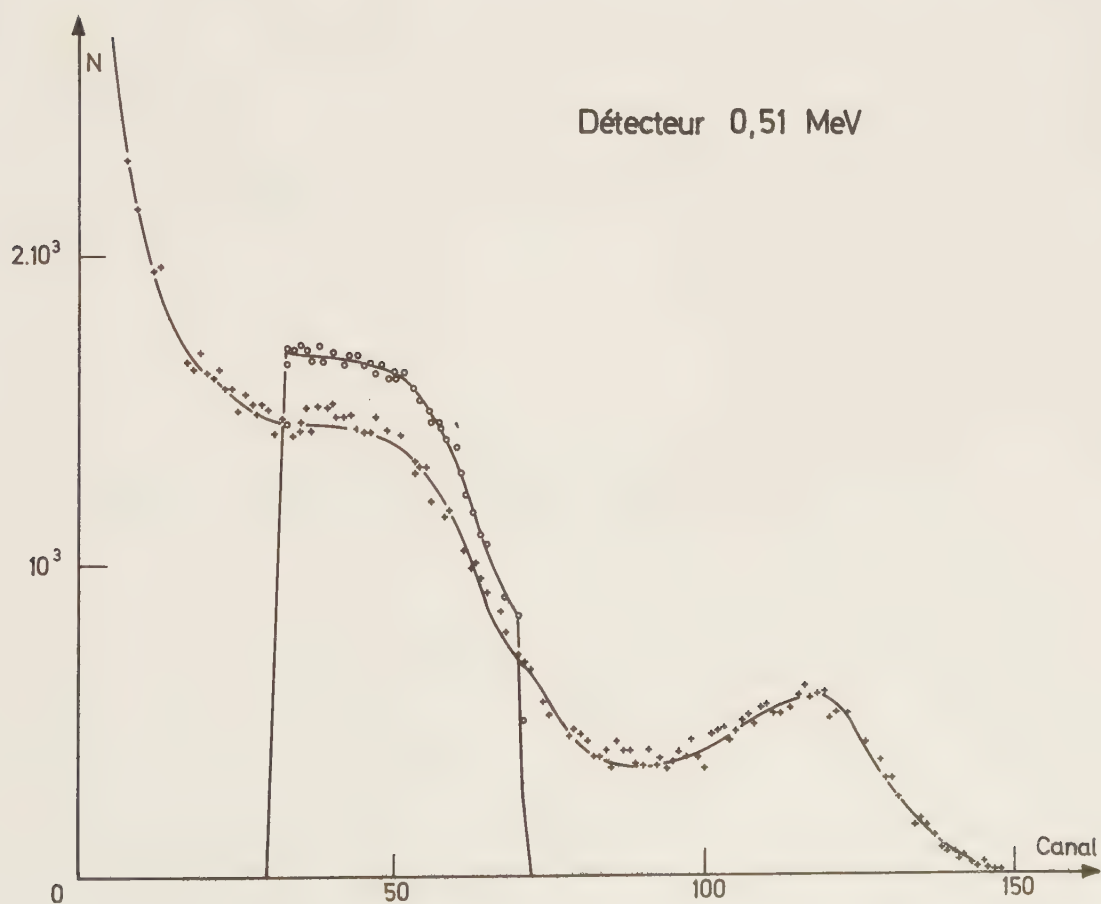
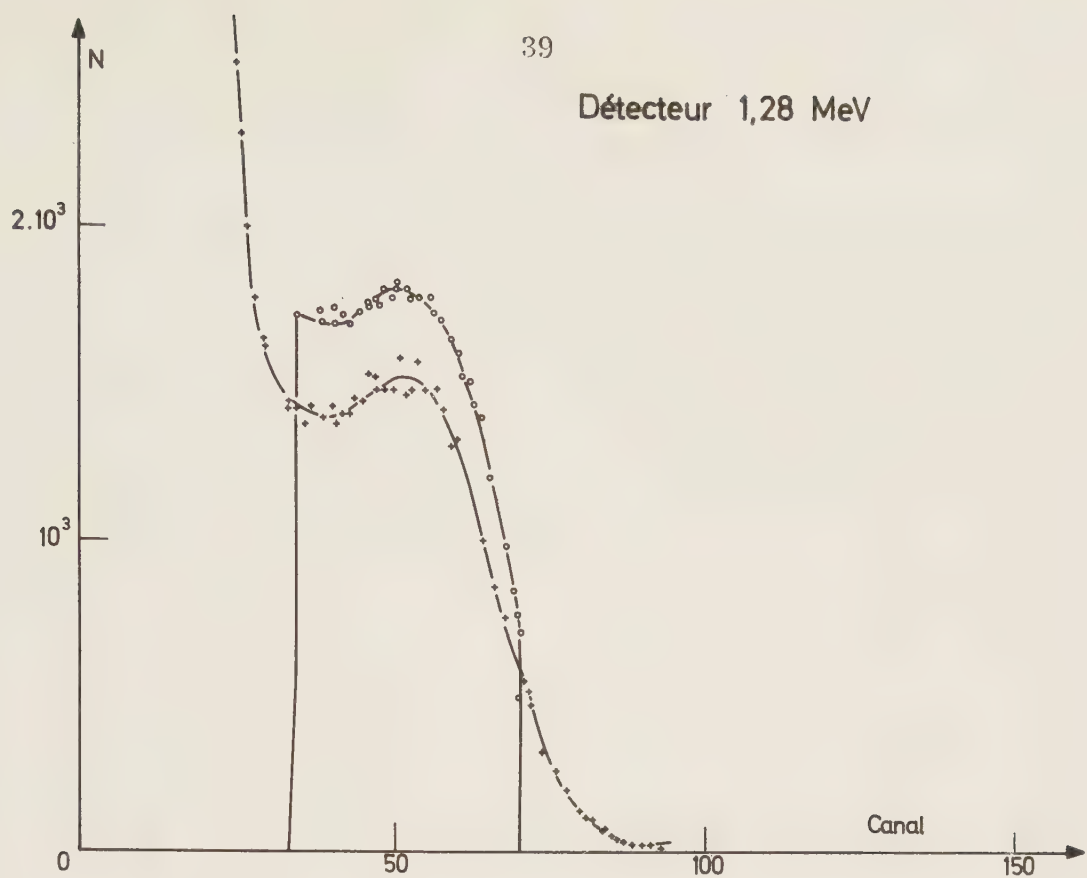


Fig.11 _ Réglage des détecteurs visualisé au sélecteur multicanaux

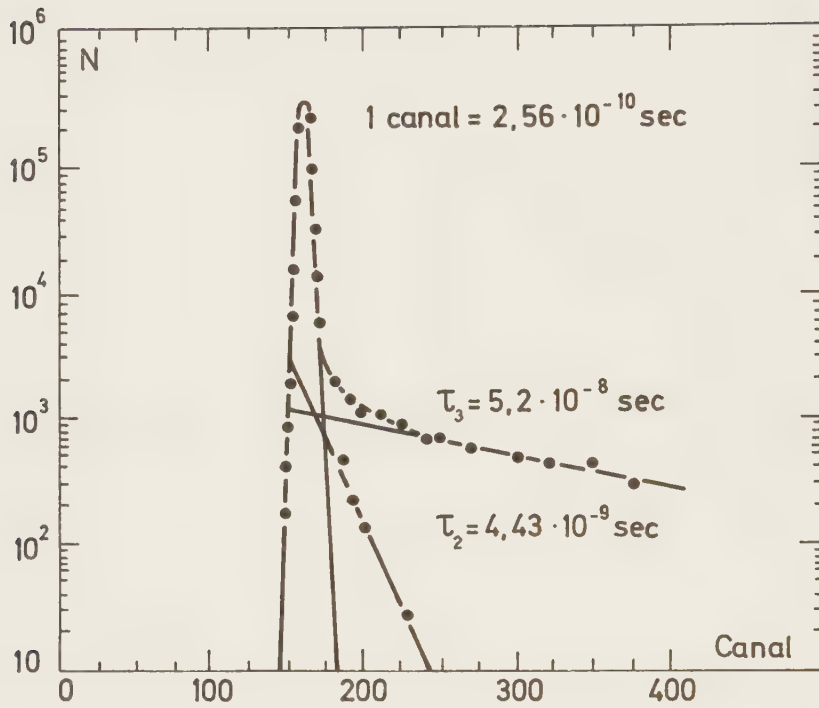


Fig.12- Spectre de temps de vie du positon dans une poudre d'oxyde de béryllium.

Les vies brèves ne sont données ici qu'à titre de comparaison car pour des temps inférieurs à la nanoseconde la contribution de la résolution dans les pentes mesurées n'est pas négligeable. Pour vérifier que la dérive de cette électronique n'est pas trop importante nous avons en outre mesuré la vie moyenne de l'état excité de 570 Kev du ^{207}Pb par la méthode des premiers moments. Les valeurs obtenues au cours de deux mesures distinctes, en procédant par enregistrements alternés du ^{60}Co et du ^{207}Bi , sont parfaitement cohérentes :

$$\tau = 0,9 \pm 0,3 \cdot 10^{-10} \text{ s}$$

$$\tau = 0,8 \pm 0,3 \cdot 10^{-10} \text{ s}$$

D'autre part elles sont très comparables à celles calculées par Gerholm [51] ($\tau = 0,9 \pm 0,3 \cdot 10^{-10} \text{ s}$) et par Sunyar [52] ($1,10 \pm 0,15 \cdot 10^{-10} \text{ s}$) par la même méthode.

CHAPITRE II - PRECISION DES MESURES ET CARACTERISTIQUES DES ECHANTILLONS

II.1 - Précision des mesures

Plusieurs causes d'erreurs peuvent être à l'origine de l'imprécision des mesures résultant de l'analyse d'un spectre de temps de vie par la méthode de la pente semi-logarithmique. Du fait de la nature statistique du phénomène observé, la droite qui caractérise chaque composante du spectre ne peut être définie qu'avec une certaine incertitude [53,54]. Il est en effet possible de faire passer plusieurs droites à travers toutes les barres d'erreurs affectées aux points expérimentaux. Les pentes et ordonnées à l'origine des deux droites extrêmes ainsi définies permettent de fixer les valeurs limites entre lesquelles la vie moyenne τ et l'intensité relative I de chaque composante sont susceptibles de varier. Outre cette erreur, la vie moyenne dépend encore de la précision $\frac{\Delta \delta t}{\delta t}$ de l'étalonnage en temps du système de détection :

$$\tau = (t_1 - t_2) / \text{Log} \frac{N_2}{N_1} \quad (35)$$

L'erreur relative s'écrit donc :

$$\frac{\Delta \tau}{\tau} = \frac{\Delta (t_1 - t_2)}{t_1 - t_2} + \frac{\Delta (\text{Log} \frac{N_2}{N_1})}{\text{Log} \frac{N_2}{N_1}} \quad (36)$$

Or $t_1 - t_2 = \mathcal{E} \delta t$, où $\mathcal{E}$ représente le nombre de canaux séparant les points t_1 et t_2 et δt la valeur de l'étalonnage d'où :

$$\frac{\Delta (t_1 - t_2)}{t_1 - t_2} = \frac{\Delta \mathcal{E}}{\mathcal{E}} + \frac{\Delta \delta t}{\delta t} \quad \text{où} \quad \frac{\Delta \mathcal{E}}{\mathcal{E}} \text{ est l'erreur de lecture et}$$

$\frac{\Delta \delta t}{\delta t}$ l'erreur d'étalonnage. En exprimant $\Delta \log \left(\frac{N_2}{N_1} \right)$ en fonction de l'erreur statistique ΔN_2 et ΔN_1 sur N_2 et N_1 , il vient donc :

$$\frac{\Delta \zeta}{\zeta} = \frac{\Delta \xi}{\xi} + \frac{\Delta \delta t}{\delta t} + \frac{\text{Log} \frac{1 + \frac{\Delta N_2}{N_2}}{1 - \frac{\Delta N_1}{N_1}}}{\text{Log} \frac{N_2}{N_1}} \quad (37)$$

L'intensité relative d'une composante est donnée par :

$$I = \frac{s}{S} e^{-\sigma^2/2 \zeta^2} \quad (38)$$

où s représente la surface sous la droite correspondant à cette composante, S la surface totale sous la courbe enregistrée et σ l'écart type de la courbe de résolution approximée à une gaussienne.

L'erreur statistique sur S qui est de l'ordre de 10^{-3} pour 10^{+6} événements enregistrés peut être négligée et la correction $e^{-\sigma^2/2 \zeta^2}$ est une constante en l'absence de dérives ; l'erreur sur I peut donc s'écrire :

$$\frac{\Delta I}{I} = \frac{\Delta s}{s} \quad (39)$$

$$\text{Or, } s = \frac{N_0 \zeta}{\delta t} \text{ d'où } \frac{\Delta I}{I} = \frac{\Delta N_0}{N_0} + \frac{\Delta \zeta}{\zeta} + \frac{\Delta \delta t}{\delta t}$$

soit encore en supposant $\frac{\Delta \zeta}{\zeta} \ll 1$:

$$\frac{\Delta I}{I} = -\frac{\Delta \zeta}{\zeta^2} t_3 + \frac{\Delta \zeta}{\zeta} + \frac{\Delta \delta t}{\delta t} \quad (40)$$

$$\frac{\Delta I}{I} = \frac{\Delta \zeta}{\zeta} \left(1 - \frac{t_3}{\zeta}\right) + \frac{\Delta \delta t}{\delta t} \quad (41)$$

où t_3 est l'abscisse du point d'intersection des deux droites limites.

La dérive de l'électronique avec la température est une autre source d'erreur qui ne peut pas être totalement ignorée. Elle se traduit en effet par une certaine imprécision sur l'origine des temps $t_3 \pm \Delta t_3$ et par une augmentation de la résolution en temps de l'appareillage $\tau \pm \Delta \tau$.

Si une dérive de l'ordre de 10^{-10} s n'augmente pas de manière très sensible, la précision obtenue sur ζ pour $\zeta > 10^{-9}$ s, l'erreur qu'elle introduit dans la détermination de l'intensité ne peut pas être négligée pour des composantes dont la vie est de l'ordre de la nanoseconde. La dérive doit alors être estimée expérimentalement pour déterminer $\frac{\Delta I}{I}$

Il est à remarquer que l'erreur provoquée par la dérive croît en fonction du temps alors que l'erreur statistique varie en $\frac{1}{\sqrt{t}}$. Il existe donc un temps d'enregistrement pour lequel la précision des mesures est optimum. Ce temps qui dépend de l'intensité relative des diverses composantes se situe entre 10 et 48 h pour notre appareillage, suivant le type de spectre enregistré.

Par exemple, pour un spectre comportant deux composantes lentes : $\zeta \simeq 100$ ns - $I \simeq 0,1$, $\zeta' \simeq 2$ ns, $I' \simeq 0,1$, la précision des mesures est de l'ordre de :

$$\frac{\Delta \zeta}{\zeta} \neq 0,05, \frac{\Delta I}{I} \neq 0,06; \frac{\Delta \zeta'}{\zeta'} \neq 0,12, \frac{\Delta I'}{I'} \neq 0,12$$

II.2 - Caractéristiques des échantillons

Au cours de cette étude, nous avons utilisé des poudres de qualité chimiquement pures pour analyse, couramment vendues dans le commerce, par PROLABO pour la plupart des échantillons exceptés Al_2O_3 (Touzart et Matignon) et SiO_2 (Degussa). Pour l'étude systématique du phénomène observé, nous avons ensuite sélectionné des échantillons de silice, magnésie et alumine dont nous présentons les caractéristiques dans le tableau II.

Echantillons	Surface spécifique (m ² /g) $\pm$ 5 %	Densité apparente (g/cm ³)	$\bar{R}$ (Å)	$\frac{\Delta}{R}$
Si O ₂ hydrophiles	50	0,3	36	0,6
	180	0,06	45	0,3
	300	0,05	76	0,25
	380	0,05	270	0,25
Si O ₂ hydrophobe	180	0,1		
Al ₂ O ₃	130	1	77	
Mg O	110	0,35	82	

TABLEAU II

Caractéristiques des échantillons - Les valeurs des surfaces spécifiques ont été mesurées par la méthode B.E.T. et $\bar{R}$ estimés par microscopie électronique.

Les poudres de silice sont préparées par hydrolyse à 1250°C du tétrachlorure de silicium ($\text{Si Cl}_4 + 2 \text{ H}_2 \text{ O} \rightarrow \text{Si O}_2 + 4 \text{ H Cl}$). Les poudres hydrophiles sont recouvertes de groupements OH, la poudre hydrofuge de groupements OCH_3 à 80 %. Ces échantillons ont une faible porosité et apparaissent au microscope électronique comme formées de particules sphériques de diamètre de l'ordre de 100 à 500 Å. Les larges anneaux obtenus par diffraction électronique prouvent la nature amorphe des grains de poudre (figure 14). Superficiellement, ces poudres peuvent adsorber de grandes quantités de gaz ou de liquides, propriété largement utilisée en chromatographie.

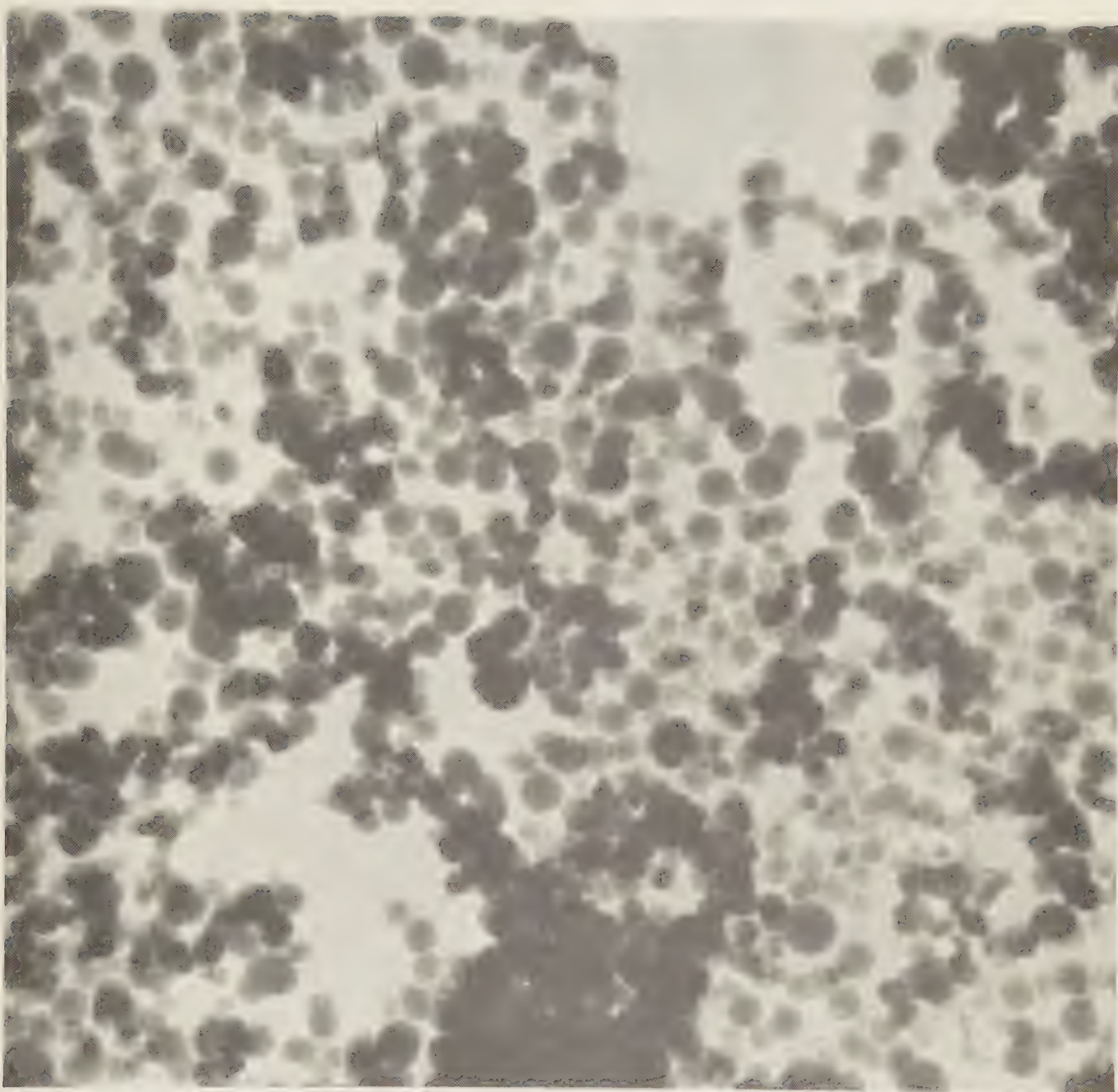


Fig.13 _ Vue d'une poudre de silice hydrophile à $50 \text{ m}^2/\text{g}$
au microscope électronique (grossissement : 70 000)

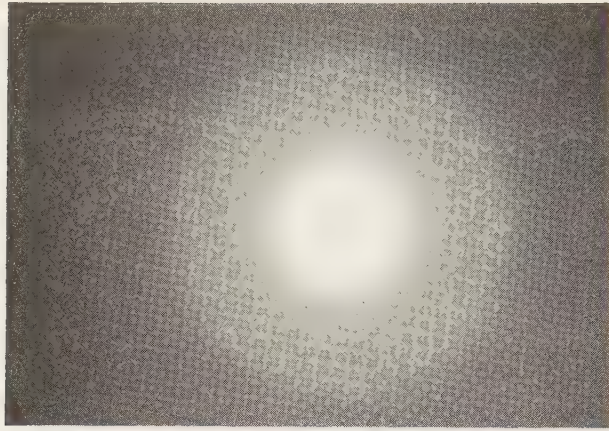


Fig. 14 - Anneau de diffraction électronique obtenu pour un échantillon de silice ($50 \text{ m}^2/\text{g}$) et analyse photométrique.

CHAPITRE III - RESULTATS EXPERIMENTAUX

III.1 - Temps de vie du positon dans les oxydes alcalino-terreux et différents types de poudres

Nous avons mesuré le temps de vie du positon dans des échantillons polycristallins d'oxydes alcalino-terreux chimiquement purs (R.P. pour analyse). Une source de 2 à 5 μ c de Na^{22} est placée au centre d'un récipient hermétiquement clos contenant l'échantillon. Pour chaque poudre, le temps de vie du positon est analysé sur la gamme 300 ns du convertisseur temps-amplitude avec un étalonnage $2,56 \cdot 10^{-10}$ s par canal. Les spectres obtenus (cf. figure 17) font apparaître l'existence dans les oxydes de béryllium, magnésium et calcium de trois vies - moyennes que nous désignerons respectivement par τ_1 , τ_2 et τ_3 .

$\tau_1 \cdot 10^{-10}$ s	I_1 (%)	$\tau_2 \cdot 10^{-9}$ s	I_2 (%)	$\tau_3 \cdot 10^{-8}$ s	I_3 (%)
BeO 2	$87 \pm 1,3$	$4,4 \pm 0,2$	$1,1 \pm 0,3$	$5,2 \pm 0,1$	$11,2 \pm 1$
MgO 2	$88 \pm 1,3$	$5,7 \pm 0,2$	$1,1 \pm 0,3$	$5,1 \pm 0,1$	$10,9 \pm 1$
CaO 2	$97 \pm 0,6$	$2,2 \pm 0,2$	$2 \pm 0,4$	$1,4 \pm 0,1$	$1,3 \pm 0,2$
BaO 2	100				

TABLEAU III

Caractéristiques du temps de vie du positon dans les oxydes alcalino-terreux polycristallins.

Bien qu'il ne soit pas possible d'affirmer que la vie brève τ_1 n'est pas de nature complexe, il est certain qu'elle résulte en majeure partie de la libre annihilation des positons. Si les valeurs de la vie intermédiaire τ_2 ne paraissent pas incompatibles avec un processus d'annihilation tel que la destruction d'orthopositonium par "pick-off", une vie supérieure à 10 ns comme τ_3 n'a jusqu'alors jamais été mise en évidence dans des

solides. Le seul état lié connu qui permet au positon de vivre aussi longtemps est l'ortho-positonium, encore faut-il que la densité électronique du milieu soit relativement faible, condition qui ne semble pas a priori remplie pour ces échantillons. Si l'ortho-positonium est présent dans ces poudres dont la nature interdit en principe sa formation, dans quelles conditions cette interdiction peut-elle être levée ? Comment peut-il vivre aussi longtemps dans un milieu aussi dense sans être détruit par "pick-off" ? Telles sont les deux questions que pose l'interprétation de ces résultats.

L'inexistence de composantes lentes dans les échantillons de baryte suggère que ces propriétés du positon ne se manifestent pas dans toutes les poudres et ne sont pas spécifiques des oxydes alcalino-terreux.

Nous avons alors cherché à déterminer dans quels types de poudres le positon est susceptible de vivre plus de 10^{-8} s avant de s'annihiler. Les résultats de cette investigation, rapportés ci-après, confirment les conclusions suggérées par l'existence d'une seule vie-moyenne dans le baryte.

	$\zeta_3 \cdot 10^{-8} s$	I_3 (%)
Al_2O_3	$6,5 \pm 0,2$	14 ± 1
SiO_2 (gel)	$6,2 \pm 0,2$	$13,5 \pm 1$
F_2Mg	$5,5 \pm 0,3$	$5,4 \pm 0,3$
F_2Ca	$7,5 \pm 0,2$	$3 \pm 0,3$
Cl_2Mg6H_2O	$5,9 \pm 0,3$	$4,5 \pm 0,3$
CdO	$1,44 \pm 0,3$	$0,1 \pm 0,05$
ZnO	$2,6 \pm 0,2$	$0,4 \pm 0,1$
ZnS		$< 0,1$
Mn_3O_4		$< 0,1$
Cr_2O_3		$< 0,1$
Fe_2O_3		$< 0,1$
La_2O_3	$3,2 \pm 0,3$	$0,4 \pm 0,1$
In_2O_3		$< 0,1$
CeO		$< 0,1$
SrO		$< 0,1$

TABLEAU IV

Existence de la composante ζ_3 dans différents types d'échantillons.

Ils révèlent, en effet, que dans le gel de silice et la poudre d'alumine les intensités I_3 de la composante lente ζ_3 sont nettement supérieures à celle des oxydes alcalino-terreux. Comparés aux 30 % d'o-Ps présents dans le quartz fondu et aux 10 % de p-Ps mesurés par LØVSETH en corrélation angulaire pour l'alumine, l'ordre de grandeur de ces intensités ($\simeq 15\%$) ne paraît pas incompatible avec l'identification de ζ_3 à la formation d'ortho-Ps. Les valeurs très voisines mesurées pour ζ_3 ($\simeq 6 \cdot 10^{-8}$ S) dans tous les échantillons où sa présence est indiscutable semblent en outre indiquer qu'un mécanisme unique d'interaction de l'ortho-positonium avec le milieu est à l'origine de cette vie abrégée.

Afin d'étudier qualitativement comment ce phénomène peut être influencé par différents traitements de la poudre nous avons utilisé les échantillons pour lesquels la composante ζ_3 est particulièrement abondante à l'exclusion de la glucine écartée à cause de sa toxicité.

Remarquons dès à présent que l'alumine, le magnésium et la silice qui se trouvent ainsi sélectionnées, sont connues pour avoir de grandes surfaces spécifiques capables d'adsorber par force de Van der Waals un nombre considérable d'atomes ou de molécules, propriété très largement utilisée en chromatographie.

III.2 - Etude des conditions d'existence de ζ_3

III.2.1 - Traitement mécanique et thermique des échantillons

Dans l'espoir de provoquer une diminution de la très longue vie ζ_3 , nous avons tenté d'augmenter la densité du milieu de comprimant nos échantillons de magnésie à 4 t/cm^2 . Dans les pastilles de densité $\simeq 1 \text{ g/cm}^3$ ainsi confectionnées, non seulement cette composante demeure mais la variation de la vie moyenne reste faible. Pour obtenir des pastilles beaucoup plus homogènes, nous avons procédé alors à un frittage de 4 heures à 1800°C sous vide.

A la suite de ce traitement qui modifie totalement la structure des échantillons, les deux composantes lentes ζ_2 et ζ_3 disparaissent complètement et une pulvérisation mécanique n'est pas suffisante pour provoquer leur réapparition. Ce résultat indique tout d'abord qu'il existe sans doute une corrélation entre les deux composantes et qu'une

grande surface ne suffit pas à provoquer le phénomène observé. Cette disparition irréversible, conséquence d'un complet réarrangement atomique, doit encore être rapprochée des résultats publiés par Bisi et Coll [47] qui signalent l'absence de vie longue et un taux d'annihilation à 3γ très voisin de celui d'annihilation libre dans un monocristal de BeO. Ceci est consistant avec le fait que le positonium n'est pas formé dans les cristaux ioniques.

Le traitement mécanique de l'échantillon augmente la densité sans modifier la structure des grains, au contraire du traitement thermique qui provoque la disparition de nombreux défauts de structure. Or, ζ_2 et ζ_3 qui subsistent après le premier traitement disparaissent après le second. Cette disparition de ζ_2 et ζ_3 après suppression des défauts suggère donc une relation entre la présence de défauts et l'origine de ces deux composantes.

Un moyen de modifier l'état physique de ces poudres sans toucher au désordre de la structure des grains qui paraît à l'origine des propriétés étudiées consiste à faire appel à leur pouvoir d'adsorption.

III.2.2 - Adsorption de liquides

Nous avons donc étudié l'influence de l'adsorption sur nos échantillons de certains liquides tels que l'eau, l'alcool et le benzène. Si, pour de grandes quantités de liquide adsorbé, il est possible de supprimer la composante ζ_3 , le spectre des vies demeure complexe. La vie de la composante lente ζ_2 est alors légèrement plus brève mais son intensité est très fortement augmentée.

Contrairement au frittage, cette évolution des deux composantes n'est pas irréversible car l'élimination du liquide adsorbé par chauffage aux environs de 400°C , permet de les faire réapparaître avec leurs caractéristiques originelles.

Toutefois, si le traitement de désorption est trop poussé (900°C) les intensités des deux composantes demeurent inférieures à leurs valeurs initiales, conséquence, certainement, d'un frittage partiel.

A l'aide de cette technique plus souple, il est donc possible d'abaisser progressivement l'intensité de la composante ζ_3 comme le prouvent les résultats ci-dessous :

Poids adsorbé en %	$Al_2O_3 = I_3$ (%)			$SiO_2 - I_3$ (%)
	H_2O	C_2H_5OH	C_6H_6	H_2O
0	10,5	10,95	10,5	13
5		10,35		
10	4,7	6,7	6,5	8,3
15	0,2	2,8		
20		1,08	2,8	
40				0,7

TABLEAU V

Intensité de la composante ζ_3 en fonction de la quantité de liquides adsorbés.

La diminution progressive de I_3 accompagnée d'une augmentation parallèle de I_2 après adsorption et la reversabilité de ces variations après désorption, confirment donc qu'il doit exister une corrélation très étroite entre ces deux composantes. D'autre part, la diminution simultanée de I_2 et I_3 après désorption à haute température, semble préciser l'importance de la structure interne des grains.

III.2.3 - Rôle de l'atmosphère gazeuse

Dans toutes les expériences que nous venons de décrire, le positon peut s'annihiler non seulement dans la poudre mais encore avec les molécules d'air qui circulent librement entre les grains.

La présence de ces molécules ne peut être tenue pour responsable de la formation du positonium observé car, dans cette hypothèse, ce phénomène serait général et devrait se manifester dans toutes les poudres. Cependant, il n'est pas inutile de vérifier si

l'atmosphère gazeuse de la poudre joue un rôle décelable expérimentalement ou si sa présence au contraire peut être délibérément ignorée.

Comme le montre la Figure 15 la vie moyenne mesurée pour τ_3 est particulièrement sensible à la pression et à la nature du gaz atmosphérique. Voisine de $7 \cdot 10^{-8}$ s dans l'air à une atmosphère, elle augmente d'un facteur deux quand une pression de 10^{-6} mm Hg règne dans l'enceinte du banc de traitement thermique, atteignant alors la vie moyenne caractéristique de l'annihilation dans le vide de l'ortho-positonium : $1,4 \cdot 10^{-7}$ s. Ce premier résultat permet d'identifier τ_3 à l'état triplet du positonium et confirme que l'interaction de ces atomes de positonium avec les grains de poudre est certainement très faible puisque elle n'affecte pas de manière sensible la vie mesurée. La valeur de τ_3 ne reflète donc que l'interaction du positonium avec les molécules du gaz atmosphérique.

Or, cette interaction ne peut se produire que si le positonium passe la majeure partie de sa vie dans l'espace situé entre les grains de poudre. La localisation du positonium entre les grains de poudre permet alors de décrire correctement les variations observées sur τ_3 dans l'air, l'argon et l'oxygène à une atmosphère. Des collisions avec les molécules d'argon ne résulte, en effet, qu'un très faible taux d'annihilation ($\simeq 2 \cdot 10^{-3} \lambda_{\text{oPs}} / \text{atm}^{+2}$) qui ne modifie pas de manière appréciable la vie de l'ortho-positonium dans le vide. Au contraire, la présence d'oxygène abaisse sensiblement cette vie, respectivement à $7 \pm 0,5 \cdot 10^{-8}$ s dans l'air (0,2 atm) et à $3,5 \pm 0,4 \cdot 10^{-8}$ s dans l'oxygène pur. Le taux de quenching de l'oxygène qu'il est possible de déduire de ces mesures $\lambda_{\text{qO}_2} = 2,1 \pm 0,3 \cdot 10^7 \text{ sec}^{-1} / \text{atm}$. est en bon accord avec la valeur rapportée par Celitans et Coll. [55] $\lambda_{\text{qO}_2} = 2,3 \pm 0,3 \cdot 10^7 \text{ sec}^{-1} / \text{atm}$.

Si l'atmosphère gazeuse influe sur la vie la plus longue, elle ne modifie pas la vie intermédiaire τ_2 ni les intensités I_2 et I_3 de ces deux composantes. La vie intermédiaire τ_2 doit donc résulter d'un mécanisme d'annihilation localisé à l'intérieur des grains où le gaz atmosphérique ne peut que difficilement pénétrer.

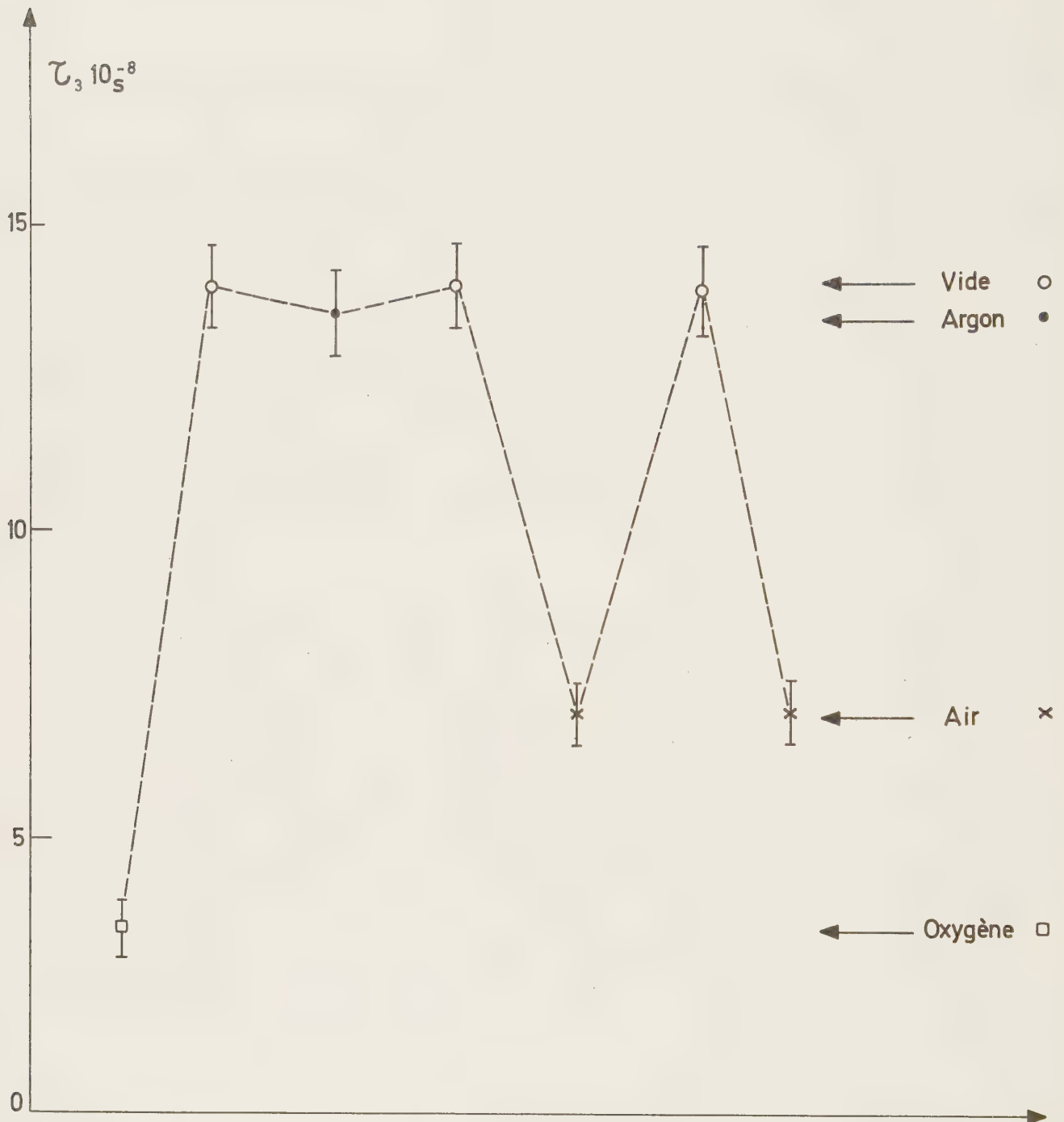


Fig. 15 _ Influence de l'atmosphère gazeuse sur la longue vie du positon dans une poudre de silice

III.2.4 - Influence des gaz adsorbés

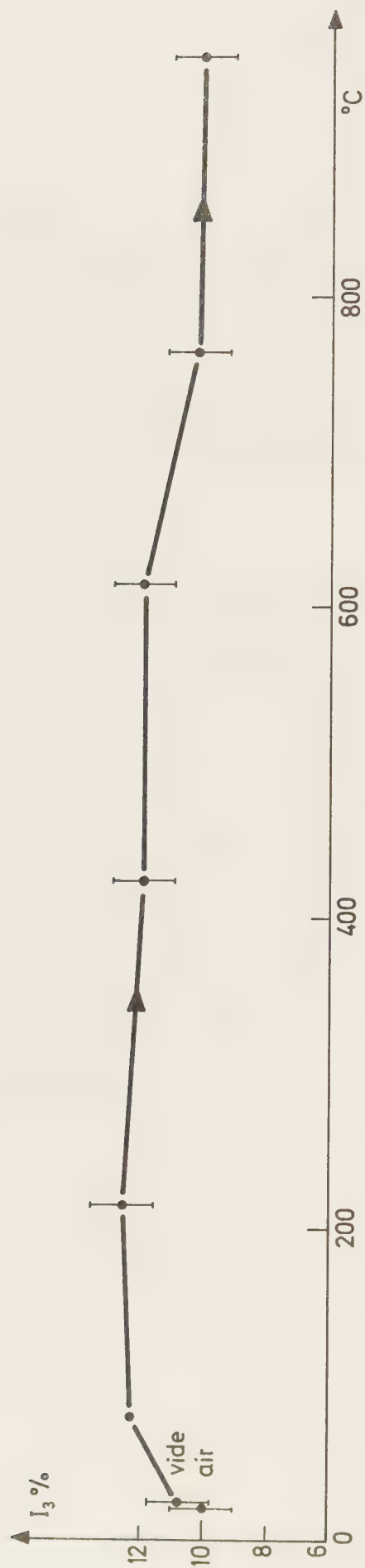
Avant d'étudier systématiquement l'influence des gaz adsorbés, nous avons cherché à mettre en évidence l'existence de ζ_3 dans le spectre de temps de vie des positons dans la cellulose en poudre et le charbon animal. Ces deux corps présentent en effet de grandes surfaces et sont eux aussi capables d'adsorber de grandes quantités de gaz. Le résultat négatif de ces expériences confirme qu'une grande surface spécifique ne constitue pas une condition suffisante pour provoquer l'apparition de ζ_3 et ce, même en présence de gaz adsorbés.

a) Désorption

Afin d'éliminer les gaz adsorbés, nos échantillons ont été chauffés sous vide, par paliers, jusqu'à 950°C. La technique expérimentale est détaillée au Chapitre I.1

Pour l'échantillon de silice (cf. figure 16), un tel traitement ne permet pas de supprimer ni de fortement réduire l'intensité I_3 de positonium formé. L'élimination du gaz physi-sorbé (200°C) s'accompagne même d'un léger accroissement de I_3 . Jusqu'à 600°C, le départ de l'eau, liée chimiquement en surface, laisse I_3 inchangé. Au delà de 600°C, ne subsistent plus en surface que des groupements OH éliminés sous forme d'eau quand on élève la température [56]. Si l'on constate une diminution de I_3 entre 600 et 950°C, elle ne peut être directement reliée à l'élimination de ces groupements car cette disparition s'accompagne d'une diminution de la surface spécifique, conséquence d'un début de frittage. Les caractéristiques ζ_2 , I_2 de la composante intermédiaire s'avèrent très peu modifiées par ce traitement thermique ; seule une augmentation significative de I_2 peut être décelée au voisinage de 900°C.

Ces résultats permettent de conclure que les molécules de gaz adsorbés en surface ne sont pas responsables de la formation du positonium observé dans la silice où Fraissard [56] a montré par spectrométrie infra-rouge et analyse au diborane que ne subsiste plus de gaz sous forme moléculaire au delà de 600°C.



- 58 -



Fig. 16. Evolution de la vie et de l'intensité de la composante longue dans SiO_2 ($180 \text{ m}^2/\text{g}$) en fonction du traitement thermique.

Cette conclusion n'est pas particulière à la silice comme le montrent les résultats relatifs à la magnésie et à l'alumine.

L'évolution de I_3 dans l'échantillon de magnésie paraît a priori différente mais elle est simplement due au fait que l'échantillon utilisé, demeuré longtemps à l'air, est très hydraté. Sa déshydratation au voisinage de 400°C ($\text{Mg}(\text{OH})_2 \rightarrow \text{MgO} + \text{H}_2\text{O}$) s'accompagne d'un brusque accroissement du pourcentage ($I_3 = 25\%$) de positonium libre observé. Le chauffage à 950°C abaisse à 20% la valeur de I_3 qui demeure ensuite inchangée par admission d'argon ou d'air ; seul l'effet de quenching de l'oxygène de l'air provoque alors une diminution de la vie.

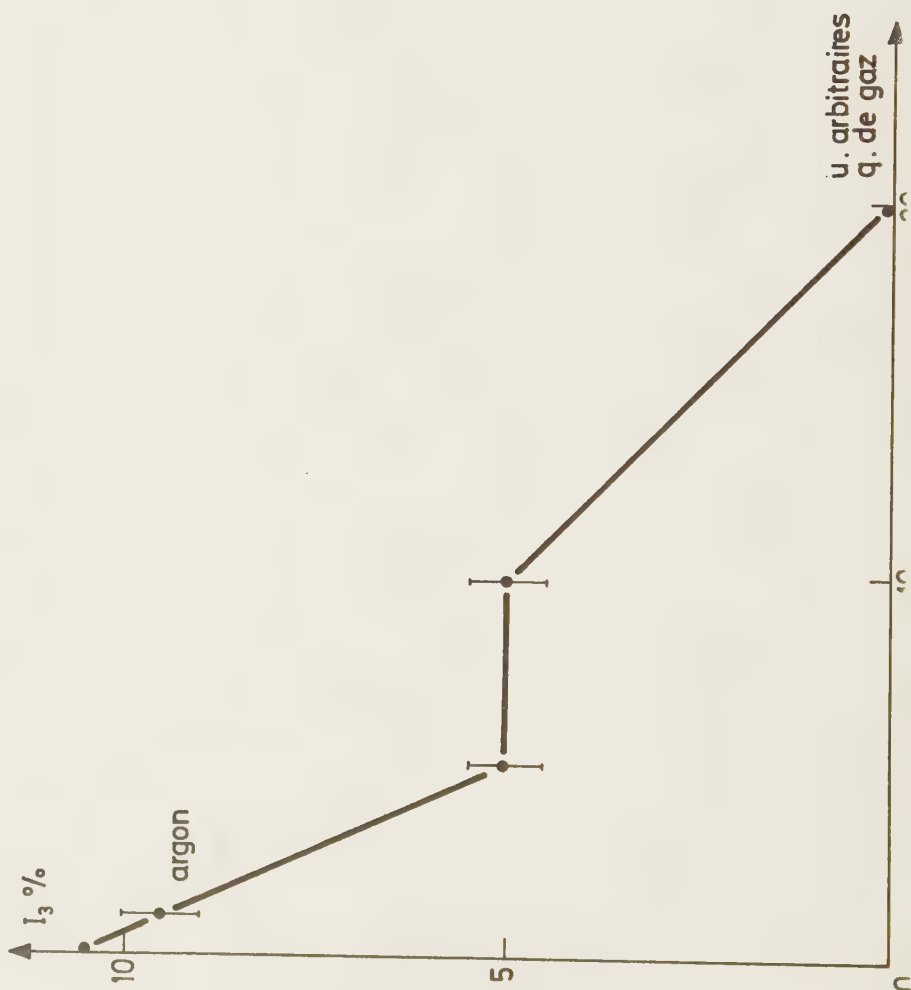
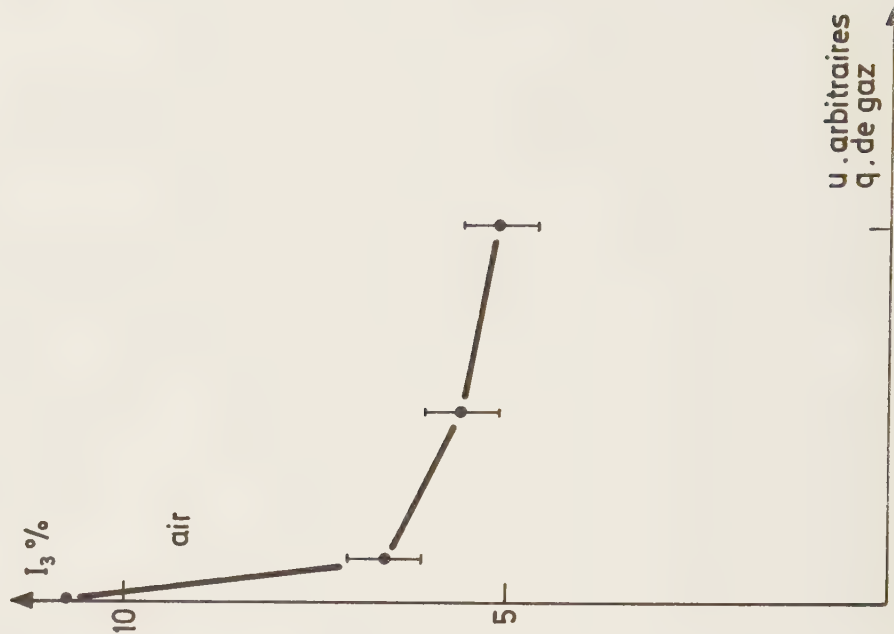
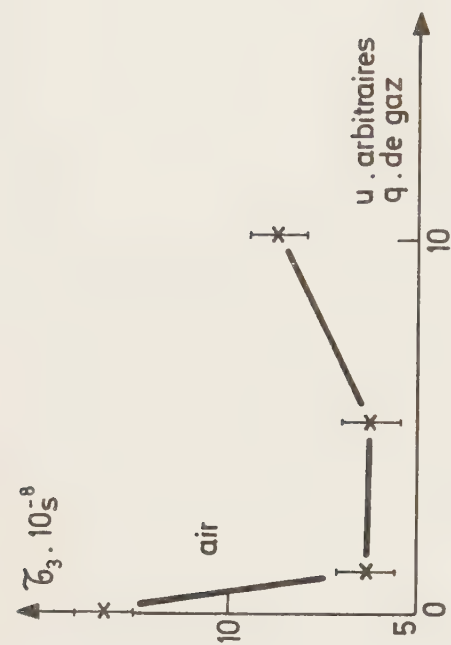
Pour vérifier si la diminution de I_3 observée à haute température résulte bien du frittage de la poudre, le traitement thermique de l'échantillon d'alumine a été modifié. Après désorption à 450°C , celui-ci a été chauffé pendant trois jours à 800°C afin de provoquer un frittage important. La faible valeur de I_3 mesurée après ce traitement, confirme que c'est bien à une modification de structure que doit être attribuée cette décroissance à haute température. A remarquer que pour l'alumine, la vie de l'ortho-positonium libre n'est jamais atteinte.

b) Adsorption

L'échantillon de silice préalablement chauffé à 400°C sous vide est refroidi à la température de l'azote liquide. Sur la surface ainsi dégazée, de l'air ou de l'argon sont alors adsorbés en quantités croissantes.

La présence d'une couche superficielle de gaz, même faible, réduit de manière appréciable le pourcentage de positonium présent entre les grains (figure 17) confirmant que le gaz adsorbé ne peut pas être à l'origine de son existence.

La disparition progressive de I_3 et l'augmentation simultanée de I_2 en fonction de quantités croissantes de gaz suggèrent que celui-ci joue le rôle d'un obstacle que doit franchir le positonium avant de vivre dans l'espace inter-granulaire, obstacle dont le fort taux quenching tend à renforcer I_2 au détriment de I_3 . La disparition totale de la composante I_3 est obtenue quand l'épaisseur de la couche gazeuse est grande devant le libre parcours du positonium avant annihilation dans cette couche.



III.3 - Nature de la composante ζ_3

La vie moyenne de $1,4 \cdot 10^{-7}$ s mesurée dans le vide et le phénomène de quenching provoqué par la présence d'oxygène constituent des preuves suffisantes pour affirmer que la formation d'o-Ps est certainement à l'origine de la composante ζ_3 observée. L'étude de l'émission de trois photons gammas qui caractérise l'annihilation libre de l'o-Ps doit donc pleinement confirmer cette affirmation et établir avec certitude la nature de ζ_3 . Si ζ_3 résulte bien de l'annihilation de l'o-Ps la probabilité d'annihilation à 3 γ que l'on mesurera doit être très voisine de $P_{3\gamma} = \frac{\zeta_3}{\zeta_{oPs}} \cdot I_3$ et doit diminuer en présence d'un champ magnétique.

III.3.1 - Mesure de $P_{3\gamma}$ par la méthode pic-vallée

Pour un même nombre de positons s'annihilant dans deux échantillons A et B, la différence du nombre de photons de 0,511 Mev détectés dans le pic d'absorption totale sera directement proportionnelle à la différence du nombre d'annihilations à 3 γ dans A et B. Si la fraction de positons susceptibles de s'annihiler avec émission de 3 γ dans A est parfaitement connue, cette différence permettra de mesurer le pourcentage d'annihilations à 3 γ dans B.

Outre l'égalité du nombre de positons qui s'annihilent dans chacun des échantillons cette technique exige que les conditions de détection des photons γ issus de A et B soient rigoureusement identiques. Telle est la méthode que nous avons utilisée pour mesurer la probabilité d'annihilation à 3 γ dans un échantillon de magnésie par comparaison avec un échantillon d'aluminium ou seulement ($\frac{1}{372}$) positon s'annihile avec émission de 3 γ .

Dans une première expérience les γ issus d'une source de Na^{22} , placée entre deux pastilles d'aluminium sont enregistrés à l'aide d'une diode au Ge (Li). Le nombre de γ nucléaires de 1,28 Mev détectés dans le spectre au delà du pic de 0,511 Mev est directement proportionnel au nombre de positons qui se sont annihilés dans l'échantillon d'aluminium. Il suffira donc de détecter un nombre égal de γ de 1,28 Mev dans le spectre obtenu avec le même détecteur pour la même source de Na^{22} placée entre deux pastilles

de MgO pour être assuré qu'un nombre égal de positons se sont annihilés dans l'aluminium et la magnésie. Il est bien sur sous entendu que la géométrie source Na²² - détecteur reste la même dans les deux cas. Si la source de γ de 1,28 Mev est bien définie il n'en est pas de même de la source des γ d'annihilation de 0,511 Mev dont les dimensions dépendent du parcours du positon dans l'échantillon étudié.

Tant que le parcours du positon dans les deux échantillons n'est pas négligeable devant la distance source-détecteur la mesure du pourcentage d'annihilation à 3 γ risque d'être faussée par la différence d'efficacité de détection des γ de 0,511 Mev entre les deux enregistrements. L'erreur qui peut en résulter n'est pas négligeable quand l'un des échantillons est très peu dense comme c'est le cas pour la poudre de magnésie utilisée ($d = 0,35 \text{ g/cm}^3$). Pour éliminer cette cause d'erreur nous avons donc été amenés à confectionner des pastilles de magnésie en comprimant la poudre à 4 tonnes/cm² ($d = 1 \text{ g/cm}^3$) et à éloigner la source à 5 cm du détecteur pour procéder aux deux enregistrements. Les deux spectres ainsi obtenus sont représentés figure 18.

Si l'on désigne par $(N0,5)_{Al}$ et $(N0,5)_{MgO}$ les nombres de γ de 0,511 Mev détectés par absorption totale pour l'aluminium et la magnésie le pourcentage d'annihilation à 3 γ sera donnée par :

$$(P_3 \gamma)_{MgO} = \frac{(N0,5)_{Al} - (N0,5)_{MgO}}{(N0,5)_{Al} \left(1 - \frac{1}{372}\right)} = 4,99 \% \pm 0,03 \quad (42)$$

Cette fraction doit être corrigée pour tenir compte qu'une fraction des γ de 0,511 Mev détectés pour la magnésie sont issus d'annihilation à 3 γ . Cette correction estimée à partir du spectre γ d'énergie continu caractéristique des annihilations à trois photons calculé par Ore et Powell [15] est compte tenu de la résolution du détecteur de 1,4 Kev de l'ordre de $3,5 \cdot 10^{-3}$ d'où une valeur de $(P_3 \gamma)_{MgO} = 5,01 \pm 0,03 \%$.

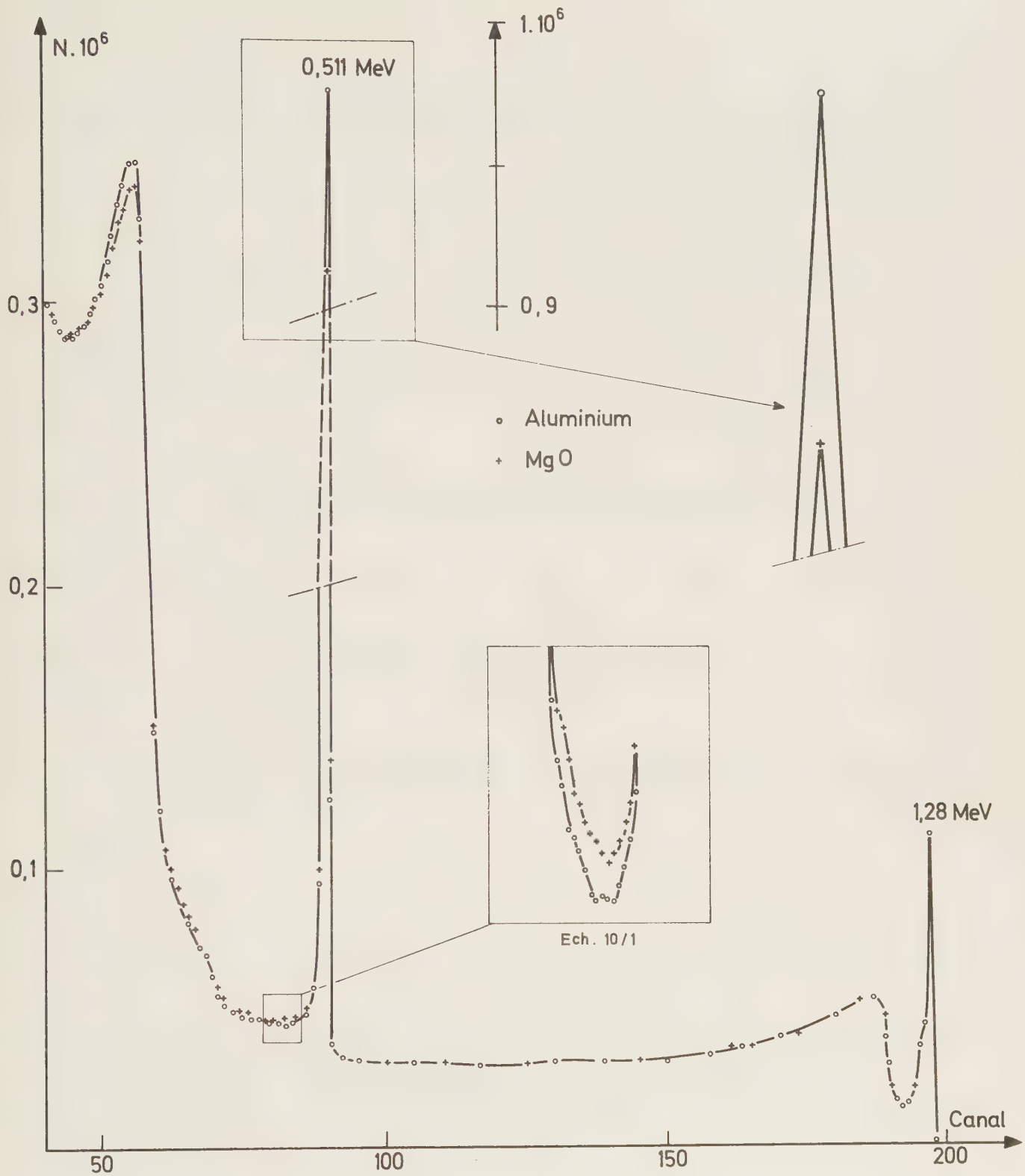


Fig. 18 - Comparaison des spectres γ du Na^{22} pour des β^+ s'annihilant dans l'aluminium et dans une pastille de magnésie

Si le temps de vie du positon est mesuré dans les mêmes pastilles de magnésie les caractéristiques de la composante τ_3 sont :

$$\begin{aligned} \tau_3 &= 7,3 \pm 0,3 \cdot 10^{-8} \text{ s} \\ \text{et} \quad I_3 &= 9,6 \pm 0,4 \% \\ \text{soit} \quad P_3 \gamma &= \frac{7,3}{14} \times 9,6 = 5 \pm 0,4 \% \end{aligned}$$

L'accord remarquable entre les deux valeurs obtenues de $P_3 \gamma$ par mesure directe et calcul à partir des caractéristiques de la composante τ_3 est une preuve que cette composante correspond à l'annihilation d'o-Ps.

III.3.2 - Variations de $P_3 \gamma$ en fonction du champ magnétique

Soient $\lambda_T = \frac{1}{\tau_3}$ et $\lambda_S = \frac{1}{\tau_{p-Ps}}$ les taux d'annihilation de l'o-Ps et du p-Ps dans un échantillon. Si cet échantillon est placé dans l'entrefer d'un électro-aimant où règne un champ magnétique H le taux d'annihilation pour les états $m = \pm 1$ de l'o-Ps demeurera égal à λ_T . La présence du champ magnétique provoquera par contre un mélange des fonctions d'ondes du p-Ps et de l'état $m = 0$ de l'o-Ps. Du fait de ce mélange le taux d'annihilation de l'état $m = 0$ de l'o-Ps ne sera plus λ_T mais :

$$\lambda'_T = \frac{y^2}{1+y^2} \lambda_S + \frac{1}{1+y^2} \lambda_T \quad (43)$$

si l'on pose $y = \frac{\sqrt{1+x^2}-1}{x}$ et $x = \frac{4 \mu_o H}{\Delta W}$

où ΔW désigne la structure fine de l'état fondamental du Ps et μ_o le magnéton de Bohr.

Dans le spectre de temps de vie apparaîtra une nouvelle composante :

$$\tau'_3 = \frac{1}{\lambda'_T}$$

De même le taux d'annihilation λ_s en présence de champ deviendra :

$$\lambda'_s = \frac{y^2}{1+y^2} \lambda_T + \frac{1}{1+y^2} \lambda_s \quad (44)$$

La probabilité d'annihilation à 3γ de l'o-Ps dans l'échantillon soumis à l'influence du champ magnétique sera donnée par :

$$(P_{3\gamma})_H = \frac{2}{3} I_3 \frac{\tau_3}{\tau_{o-Ps}} + I'_3 \frac{\tau'_3}{\tau_{o-Ps}} \quad (45)$$

Si f désigne le poids relatif qui doit être affecté à l'état triplet $m = 0$ pour tenir compte de la probabilité de détection dans la géométrie utilisée, $(P_{3\gamma})_H$ mesuré peut être exprimé sous la forme :

$$\frac{(P_{3\gamma})_H}{(P_{3\gamma})_o} = 1 - \frac{f}{1 + \frac{\tau_{p-Ps}}{\tau_3} \cdot \frac{1}{y^2}} \quad (46)$$

où $(P_{3\gamma})_o = \frac{\tau_3}{\tau_{o-Ps}} I_3$ représente la probabilité d'annihilation à 3γ en l'absence de champ magnétique, et $f = 0,39$ quand les γ d'annihilation sont mesurés à l'aide d'un seul détecteur perpendiculaire au champ magnétique.

Pour effectuer ces mesures un échantillon de poudre de magnésie, au sein duquel est placée une source de Na^{22} , est disposé dans l'entrefer d'un électro-aimant où règne un champ magnétique pouvant atteindre 7000 Gauss. Afin de réduire le quenching de l'oxygène de l'air, l'échantillon est balayé en permanence par un courant d'argon. Les deux scintillateurs sont montés sur des guides de lumière, de 40 cm de longueur, de manière à soustraire les photo-multiplicateurs à l'influence néfaste du champ magnétique.

Le spectre de temps de vie du positon est ensuite enregistré pour différentes valeurs du champ et le pourcentage d'annihilations à 3γ est calculé par la formule (45) à partir des caractéristiques des composantes τ_3 et τ'_3 .

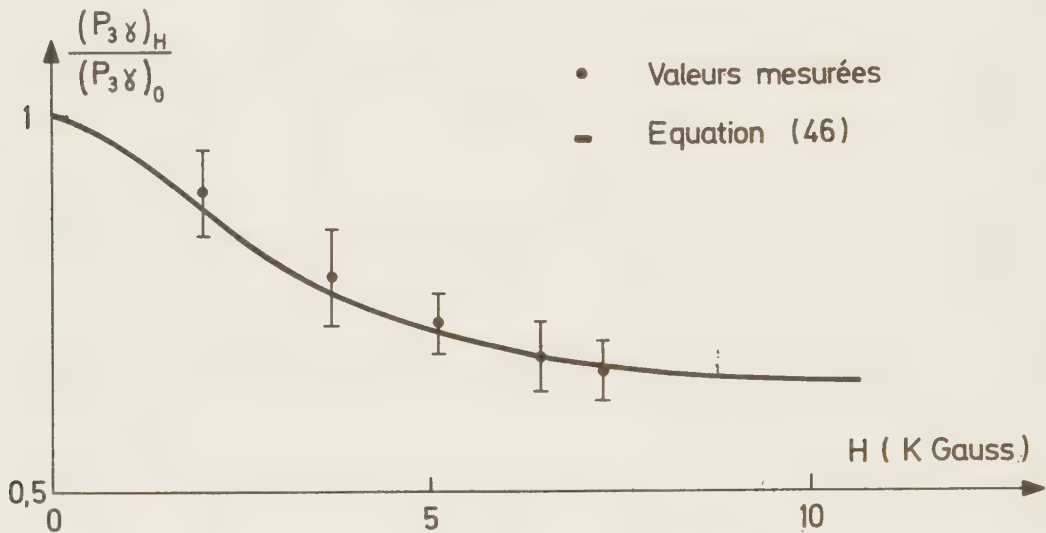


Fig. 19 - Probabilité relative d'annihilation à 3γ en présence d'un champ magnétique

Les valeurs de $\frac{(P_{3\gamma})_H}{(P_{3\gamma})_0}$ ainsi mesurées sont présentées sur la figure 19.

L'excellent accord de ces résultats expérimentaux avec la courbe théorique calculée à l'aide de l'équation (46) permet de conclure indiscutablement que la fraction des positons qui s'annihilent avec la vie-moyenne τ_3 ont préalablement formé de l'o-Ps. $(P_{3\gamma})_H$ a aussi été mesuré par Fiorentini [60] dans MgO par une technique de triples coïncidences. Ses résultats en excellent accord avec les prédictions théoriques [61] confirment nos conclusions.

III.4.1 - Influence de la surface [62]

Les variations importantes enregistrées pour I_2 et I_3 en fonction de la couche gazeuse ou liquide adsorbée montrent clairement que la surface joue un rôle dans le phénomène étudié. Pour préciser ce rôle, nous avons donc étudié comment, en l'absence de gaz adsorbés, varie la quantité de P_s dans l'espace intergranulaire I_3 en fonction de la surface spécifique S qui caractérise la granulométrie d'une poudre.

Pour cette étude, nous avons utilisé quatre échantillons de silice hydrophile présentant des surfaces spécifiques de 50, 180, 300 et 380 m²/g. Afin de comparer des états de surface aussi semblables que possible, nous avons fait subir à tous ces échantillons le même traitement thermique sous vide à 200, 400 et 600°C. La variation enregistrée pour I₃ en fonction de S est représentée figure 20. Il apparaît que la quantité de Ps libre dans l'espace intergranulaire croît en fonction de S, c'est à dire quand le rayon des grains R diminue puisque $S = \frac{3}{R\rho}$ où ρ est la densité du grain. Ce résultat brut ne suffit pas cependant à préciser où est formé le P_s, observé dans l'espace intergranulaire. Il peut en effet être formé dans tout le grain ou seulement à la surface.

L'hypothèse d'une catalyse de surface semble toutefois peu vraisemblable. Vu le très étroit domaine d'énergie dans lequel le positon peut former du Ps, la probabilité pour qu'un positon possède à la surface du grain une énergie dans ce domaine est beaucoup trop petite pour expliquer la grande quantité de Ps formé. D'autre part la nature des groupements superficiels devrait être très sensible dans un processus de catalyse. Or nous n'avons pas observé de grandes variations de I₃ dans deux échantillons de silice de même surface spécifique dont les groupements superficiels sont respectivement OH et OCH₃. Enfin toujours dans cette hypothèse de formation purement superficielle de Ps une composante lente devrait exister dans une poudre métallique de grande surface spécifique oxydée superficiellement. Or, pour une poudre d'aluminium recouverte d'une fine pellicule d'alumine, il n'existe pas de composante lente dans le spectre de temps de vie. Pour ces différentes raisons il est donc possible de conclure que le Ps est formé dans tout le volume du grain.

	$\tau_2 \times 10^{-9} \text{ s}$	I ₂ (%)	$\tau_3 \times 10^{-8} \text{ s}$	I ₃ (%)
Silice hydrophile 180 m ² /g	1,7 ± 0,3	9,8 ± 0,8	6,58 ± 0,2	12,5 ± 1
Silice hydrofuge	1,7 ± 0,3	7,2 ± 0,7	6,93 ± 0,2	15,5 ± 1
Poudre aluminium	-	-	-	-

TABLEAU VI

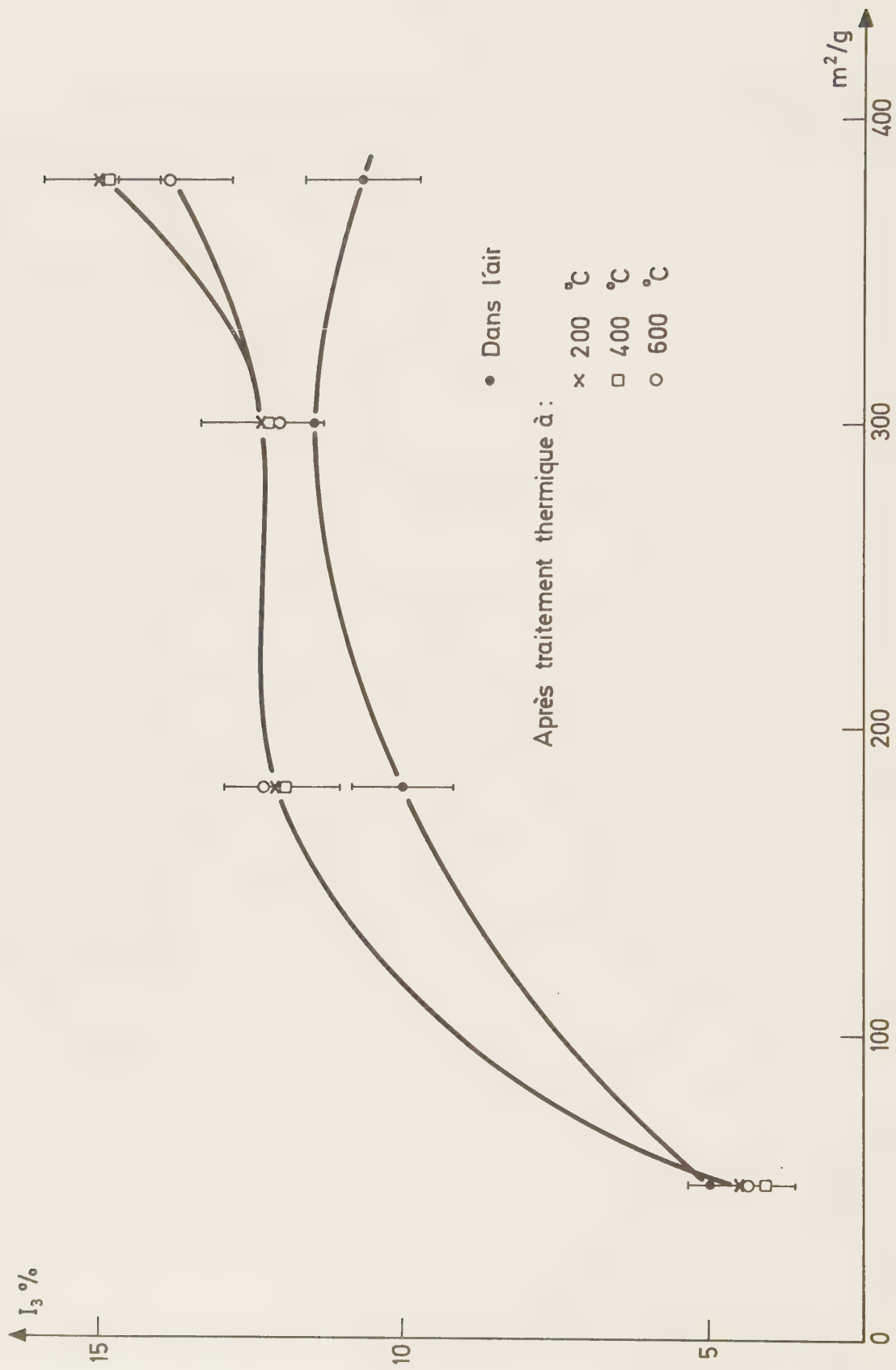


Fig. 20- Variations de I_3 en fonction de la surface spécifique.

Le Ps possèdera donc une certaine probabilité de s'annihiler par pick-off à l'intérieur du grain où il a été formé d'où la composante I_2, τ_2 . Il pourra aussi s'échapper du grain dans le vide intergranulaire où il vivra librement (I_3, τ_3). La quantité totale de Ps formé dans la poudre sera alors égale à $I_2 + I_3$. La probabilité d'échappement sera représentée par $\emptyset_3 = \frac{I_3}{I_2 + I_3}$ et celle d'annihilation par pick-off dans le grain par $\emptyset_2 = \frac{I_2}{I_2 + I_3}$.

Les valeurs mesurées pour $\emptyset_2$ et $\emptyset_3$ (Tableau VII) dans les quatre échantillons suggèrent une variation approximativement exponentielle en fonction de $\frac{1}{R}$ (Figure 21).

$S(m^2/g)$	$\tau_2 \times 10^{-9} s$	$I_2 \%$	$\tau_3 \times 10^{-8} s$	$I_3 \%$	$\emptyset_2 = \frac{I_2}{I_2 + I_3}$	$\emptyset_3 = 1 - \emptyset_2$
50	1.77 ± 0.2	28 ± 2	14 ± 0.4	4 ± 0.5	87.5 ± 2.5	12.5 ± 2.5
180	1.89 ± 0.2	10.7 ± 0.8	14.2 ± 0.3	11.6 ± 1	48 ± 4	52 ± 4
300	1.8 ± 0.2	4.5 ± 1	13.2 ± 0.3	12 ± 1	27.5 ± 6	72.5 ± 6
380	2 ± 0.4	4 ± 1	13.7 ± 0.3	15 ± 1	22.5 ± 6	77.5 ± 6

TABLEAU VII

Vies moyennes et intensités des composantes τ_2 et τ_3 .

Les caractéristiques de chaque vie sont mesurées séparément en utilisant deux étalonnages différents.

La formation de Ps à l'intérieur des grains de poudre permet d'expliquer pratiquement tous les résultats expérimentaux. La surface des grains ne joue pas en effet de rôle particulier dans le mécanisme de formation du Ps. De l'adsorption de gaz et de liquides ne résulte qu'une augmentation du rayon des grains dont la seule conséquence est de diminuer la probabilité d'échappement.

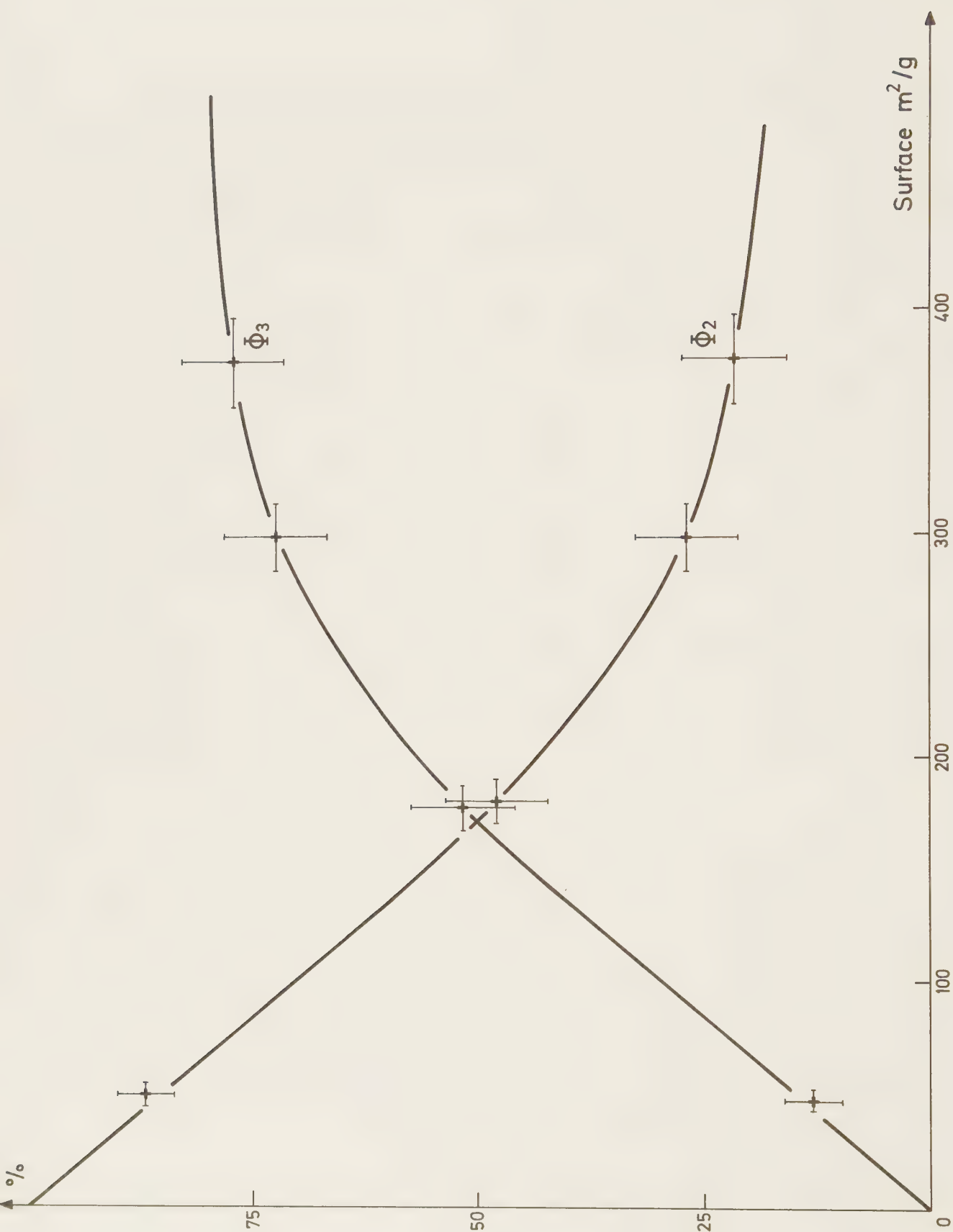


Fig. 21 - Intensités relatives de positonium libre et "pick-off"

La quantité totale de Ps formé est fonction du nombre de défauts présents dans la structure du grain d'où la disparition du phénomène après traitement à haute température qui élimine les défauts.

Les propriétés dynamiques du positonium ainsi mises en évidence peuvent être analysées théoriquement en termes de diffusion. Son comportement dans l'espace intergranulaire où la présence des grains n'affecte pas ses caractéristiques à l'état libre peut en outre être expliqué à l'aide d'un modèle simple.

TROISIEME PARTIE

CHAPITRE I - DIFFUSION DU POSITONIUM

I.1 - Diffusion dans un grain

I.2 - Diffusion dans une poudre

I.3 - Paramètres physiques caractéristiques de la diffusion du positonium
dans différentes poudres

I.3.1 - Constantes de diffusion et parcours moyen avant annihilation

I.3.2 - Influence de la température

CHAPITRE II - PROPRIETES DU POSITONIUM DANS LE VOLUME LIBRE

II.1 - Probabilité de diffusion à l'intérieur des grains

II.2 - Taux de "pick-off" du positonium dans l'espace intergranulaire

Tous les résultats expérimentaux que nous venons de présenter prouvent que le O-Ps observé dans ces oxydes en poudres est formé dans des défauts présents à l'intérieur des grains et diffuse ensuite à l'extérieur des grains où il finit par s'annihiler. Au cours de la diffusion à l'intérieur d'un grain le taux d'annihilation de l'O-Ps est près de dix fois plus élevé qu'à l'extérieur du grain où il vit librement en l'absence d'atmosphère.

Ces propriétés dynamiques du Ps peuvent être formulées quantitativement en fonction d'une constante de diffusion et comparées aux résultats expérimentaux obtenus avec les échantillons de silice dont les caractéristiques ont été confirmées par diverses techniques. Les clichés de microscopie électronique prouvent que les grains de poudre sont des sphères. La surface spécifique mesurée à partir des isothermes d'adsorption et reliée au rayon moyen R des grains par $R = \frac{3}{S\rho}$, où ρ est la densité du grain. Les valeurs obtenues respectivement pour R et S indiquent que $\rho \neq 2,2 \text{ g/cm}^3$ qui est la densité du quartz fondu. Cette valeur est confirmée par le taux d'annihilation dans le grain égal à celui du quartz fondu.

Pour expliquer les propriétés du positonium dans l'espace intergranulaire il est nécessaire de connaître le volume libre de la poudre. A partir de la valeur de ρ il est aisé de calculer que le volume libre qui doit être associé à chaque grain pour obtenir des densités apparentes de $0,3$ à $0,05 \text{ g/cm}^3$ est de 7 à 45 fois plus grand que le volume du grain de sorte qu'une poudre apparaît comme formée de grains isolés les uns des autres.

CHAPITRE I - DIFFUSION DU POSITONIUM [63]

1.1 - Diffusion dans un grain

Soit $g(\vec{r}_o) d^3 r_o$ la probabilité pour qu'un atome de Ps soit formé dans un grain en un point $\vec{r} = \vec{r}_o$, probabilité normalisée sur le volume du grain :

$$\int_{\text{grain}} g(\vec{r}_o) d^3 r_o = 1 \quad (47)$$

Si cet atome d'ortho-positonium au cours du processus de diffusion franchit la surface du grain, il vit ensuite dans le volume intergranulaire et sa probabilité de retourner à l'intérieur du grain est supposée nulle.

La surface $\vec{r} = \vec{R}$, joue donc en quelque sorte le rôle d'une paroi parfaitement absorbante.

Pour un grand nombre par unité de temps n , de diffusions sur un parcours élémentaire $\langle l \rangle$, la probabilité qu'un atome situé en $\vec{r}_o$ au temps $t = 0$ diffuse au point $\vec{r}$ à l'instant t s'écrit [64] :

$$W(\vec{r}, t) = \frac{C}{D^{3/2} t^{3/2}} e^{-\frac{|\vec{r} - \vec{r}_o|^2}{4 D t}} \quad (48) a$$

$$\text{où} \quad D = \frac{1}{2} n \langle l \rangle^2 \quad (48) b$$

est la constante de diffusion supposée la même dans toutes les directions.

La condition aux limites est :

$$W = 0 \quad \text{pour} \quad \vec{r} = \vec{R}$$

Le taux Q avec lequel les atomes situés en $\vec{r}_0$ pour $t = 0$ échapperont du grain à travers sa surface S est donné par :

$$\frac{dQ}{dS} = -D \left| \vec{j} \cdot \nabla_{\vec{r}} W \right|_{r=R} \quad (49)$$

où $\vec{j}$ est un vecteur unité normal à la surface.

Donc :

$$\frac{dQ}{dS} = \frac{|\vec{x}| C}{2D^{3/2} t^{5/2}} e^{-\frac{|\vec{x}|^2}{4Dt}} \frac{dx}{dR} \quad (50)$$

si l'on pose $\vec{r} - \vec{r}_0 = \vec{x}$, dQ/dS s'exprime en fonction de l'angle ψ que fait $\vec{r}$ avec la normale à l'élément de surface dS :

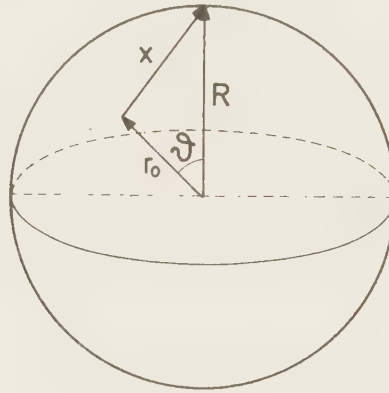


Fig : 22

$$\frac{dQ}{dS} = \frac{C (R - r_0 \cos \psi)}{2D^{3/2} t^{5/2}} e^{-\frac{R^2 - r_0^2 + 2 R r_0 \cos \psi}{4Dt}} \quad (51)$$

L'élément de surface dS est relié à ψ par :

$$dS = 2 \pi R^2 \sin \psi d\psi$$

donc :

$$Q = \frac{\pi R^2 C}{D^{3/2} t^{5/2}} \int_0^\pi (R - r_o \cos \vartheta) e^{-\frac{(R^2 + r_o^2 - 2 R r_o \cos \vartheta)}{4 D t}} \sin \vartheta d\vartheta \quad (52)$$

et après intégration :

$$Q = \frac{2 \pi C}{D^{1/2} t^{3/2}} \cdot \frac{R}{r_o} \left[(R - r_o + \frac{2 D t}{R}) e^{-\frac{(R - r_o)^2}{4 D t}} - (R + r_o + \frac{2 D t}{R}) e^{-\frac{(R + r_o)^2}{4 D t}} \right] \quad (53)$$

Au cours de leur diffusion à l'intérieur du grain, les atomes de Ps peuvent s'annihiler par "pick-off" à un taux $\lambda_2 = \zeta_2^{-1}$ de sorte que leur probabilité d'exister à l'instant t est de $e^{-\lambda_2 t}$. Pour les atomes présents en $r = r_o$ au temps $t = 0$ qui n'ont pas été détruits la probabilité d'annihilation par ce mécanisme dans l'intervalle de temps $(t, t+dt)$ est :

$$(\lambda_2 - Q) e^{-\lambda_2 t} dt$$

Pour tous les atomes de positonium formés en un point quelconque du grain, cette probabilité de s'annihiler par pick-off s'écrira donc :

$$\varnothing_2 = \int g(\vec{r}_o) d^3 r_o \int_0^\infty (\lambda_2 - Q(t, \vec{r}_o)) e^{-\lambda_2 t} dt \quad (54)$$

ou :

$$\varnothing_2 = 1 - \int g(\vec{r}_o) d^3 r_o \int_0^\infty Q(t, \vec{r}_o) e^{-\lambda_2 t} dt \quad (55)$$

L'intégration en temps conduit à :

$$\int_0^\infty Q e^{-\lambda_2 t} dt = \frac{4 \pi^{3/2} C R}{r_o} \left[e^{-\frac{(R - r_o)}{(D \zeta_2)^{1/2}}} - e^{-\frac{(R + r_o)}{(D \zeta_2)^{1/2}}} \right] \left[1 + \frac{(D \zeta_2)^{1/2}}{R} \right] \quad (56)$$

Pour calculer $\varnothing_2(R)$ il est nécessaire de connaître $g(\vec{r}_o)$. Si les défauts sont distribués au hasard dans le grain $g(\vec{r}_o) = Cte = \frac{3}{4\pi R^3}$.

L'expression de $\varnothing_2$ devient alors :

$$\varnothing_2 = 1 - 3(4\pi)^{3/2} C \frac{(\alpha+1)e^{-\alpha}}{\alpha^3} \int_0^\alpha y \sinh(\alpha y) d(\alpha y) \quad (57)$$

si l'on pose :

$$\beta \equiv \frac{1}{\alpha} \equiv \frac{(D\tau_2)^{1/2}}{R} \quad \text{et } y \equiv \frac{r_o}{R} \quad (58)$$

Soit, tous calculs faits et après normalisation :

$$\varnothing_2 = 1 - \frac{3}{2} \beta \left[1 - \beta^2 + (1+\beta)^2 e^{-2/\beta} \right] \quad (59)$$

La probabilité d'échappement de l'o-positonium est donnée simplement par :

$$\varnothing_3 = 1 - \varnothing_2$$

Si la surface supposée parfaitement transparente jouait le rôle d'une barrière de potentiel le second terme de l'équation (59) devrait être multiplié par la transmittivité de la barrière $T < 1$.

On peut toutefois estimer que le positonium subit l'influence d'une chute de potentiel en franchissant la surface qui n'affecte pas les équations de diffusion ($T = 1$).

1.2 - Diffusion du positonium dans une poudre

A partir des clichés de microscopie électronique il est encore possible d'évaluer comment sont distribués statistiquement les rayons des grains figure 23. Ces distributions sont approximativement gaussiennes avec des largeurs à mi-hauteur Δ variant entre 0,2 et $0,6 \bar{R}$. Nous avons cherché à déterminer comment ces distributions peuvent modifier l'expression $\varnothing_2(R)$ fournie par l'équation (59) de la diffusion dans un grain.

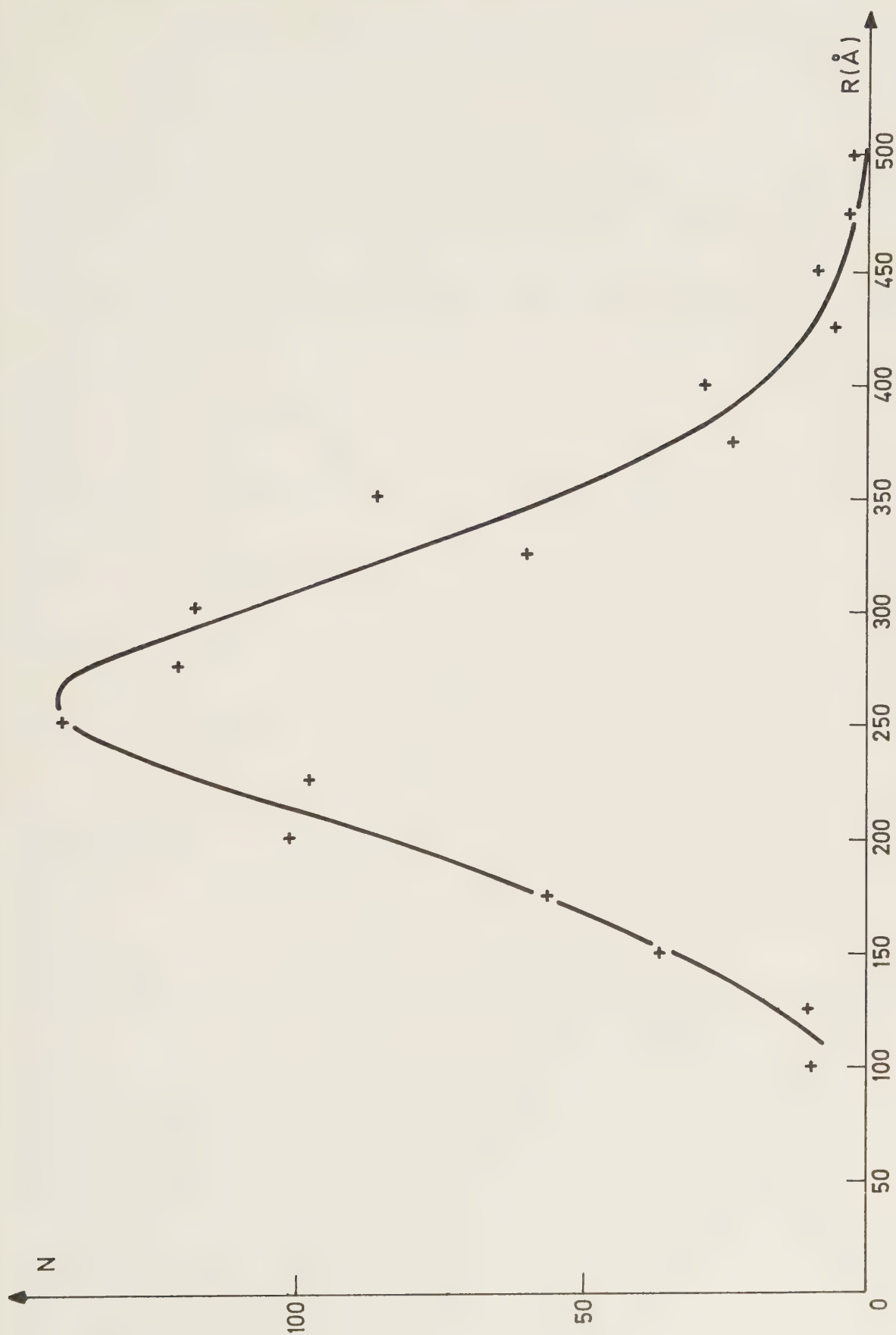


Fig. 23. Répartition statistique du rayon des grains dans une poudre de silice à $50 \text{ m}^2/\text{g}$.

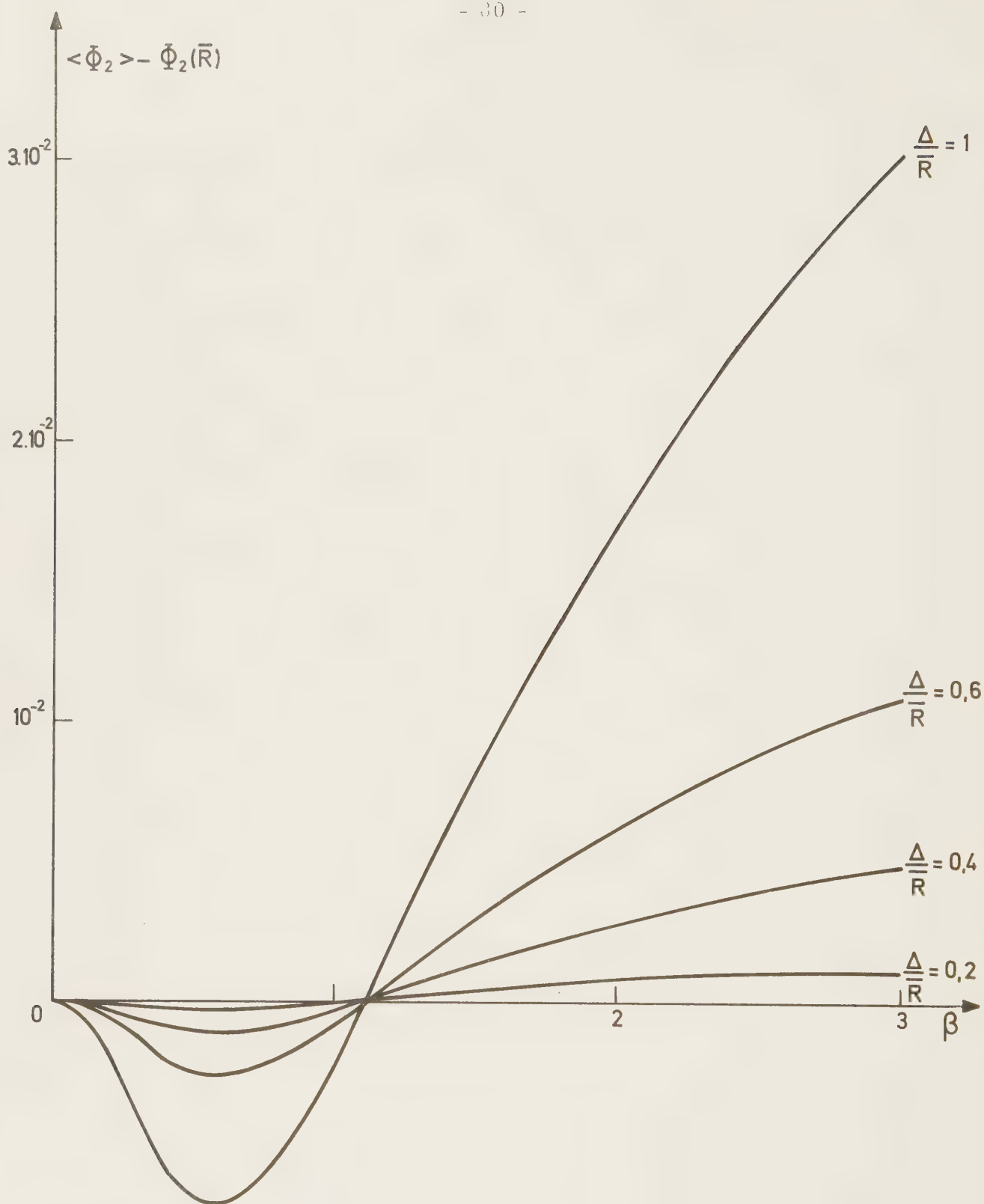


Fig. 24 - Variations de $\langle \Phi_2 \rangle - \Phi_2(\bar{R})$ en fonction de β pour différentes valeurs de $\frac{\Delta}{R}$

Soit une distribution de la forme :

$$f(R, \bar{R}, \alpha) = \frac{1}{R\sqrt{2\pi\alpha}} e^{-\frac{(R - \bar{R})^2}{\alpha \bar{R}^2}} \quad (60)$$

où $\alpha = \frac{1}{4 \times 0,693} \frac{\Delta}{R}$ est le paramètre qui représente l'étalement de la distribution.

Si l'on pose :

$$\varnothing_2(R) = 1 - \varnothing_3(R) \quad (61)$$

l'équation de diffusion tenant compte de la distribution (60) s'écrit :

$$\langle \varnothing_2(\bar{R}) \rangle = 1 - \int_0^{\infty} \varnothing_3(R) f(R - \bar{R}, \alpha) dR$$

et en posant $x = R - \bar{R}$

$$\langle \varnothing_2(\bar{R}) \rangle = 1 - \int_{-\bar{R}}^{\infty} \varnothing_3(\bar{R} + x) f(x) dx \quad (62)$$

On peut prendre $-\infty$ comme borne inférieure d'intégration et développer $g(\bar{R} + x)$ qui varie lentement par rapport à $f(x)$ en série de Taylor. L'équation (62) devient alors :

$$\langle \varnothing_2(\bar{R}) \rangle = \varnothing_2(\bar{R}) - \sum_{n=1}^{\infty} \left[\frac{d^{2n}}{dR^{2n}} (\varnothing_2(R)) \right]_{R=\bar{R}} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{x^{2n}}{(2n)!} f(x) dx \quad (63)$$

car toutes les intégrales de la forme $\int_{-\infty}^{+\infty} x^{2n+1} f(x) dx$ sont nulles. Limitées à la dérivée seconde, les variations de la probabilité d'annihilation par pick-off provoquées par la distribution $f(R, \bar{R}, \alpha)$ seront donc égales à :

$$\langle \varnothing_2(\bar{R}) \rangle - \varnothing_2(\bar{R}) = - \frac{3\alpha}{4} \left[\beta^3 - 6\beta^5 + (2\beta + 6\beta^2 + 11\beta^3 + 12\beta^4 + 6\beta^5) e^{-\frac{2}{\beta}} \right] \quad (64)$$

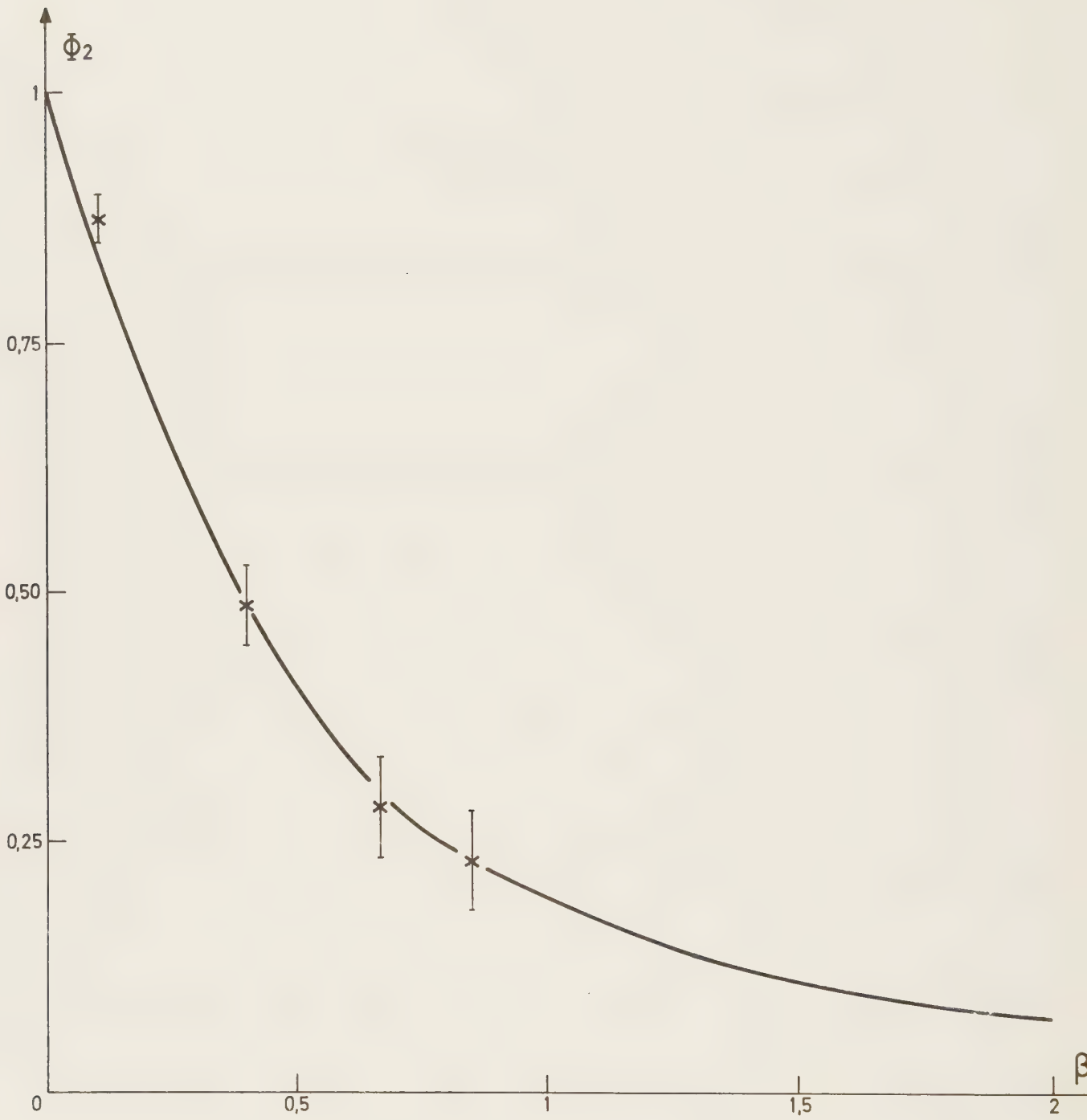


Fig. 25. Comparaison de Φ_2 (équation 59) avec les résultats expérimentaux dans quatre échantillons de silice.

Ces variations en fonction de β sont représentées figure 24 pour différentes valeurs de $\frac{\Delta}{R}$.

Les corrections qui en résultent sont inférieures à 2 % pour $\beta < 2$ et $\frac{\Delta}{R} \leq 0,6$.

La figure 25 montre que l'équation (59) décrit très correctement les variations mesurées expérimentalement pour $\rho_2 = \frac{I_2}{I_2 + I_3}$ dans les échantillons de silice.

La constante de diffusion qui fournit le meilleur accord avec l'expérience peut être estimée à :

$$D = 5,8 \pm 1,9 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}.$$

Il est à remarquer que la valeur de cette constante est du même ordre de grandeur que celle mesurée par Avakian et Coll. [65] pour l'exciton triplet $D = 2 \text{ à } 9 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2 \text{ sec}^{-1}$ soulignant l'image selon laquelle le positonium peut être analogue à un exciton artificiellement injecté dans le solide.

1.3 - Paramètres physiques caractéristiques de la diffusion du positonium dans différentes poudres

1.3.1 - Constantes de diffusion et parcours moyen avant annihilation

Le rayon moyen des grains d'un échantillon et une simple mesure de la vie τ_2 et de son intensité relative $\frac{I_2}{I_2 + I_3}$ suffisent pour évaluer la constante de diffusion du positonium dans une poudre.

L'équation de diffusion (59) donne en effet la valeur de β qui portée dans l'équation (58) permet de calculer D . Connaissant D il est alors possible d'estimer un parcours moyen de l'o-positonium avant annihilation Λ_2 défini comme :

$$\Lambda_2 = (2 D \tau_2)^{1/2} \quad (65)$$

Les parcours moyens avant annihilation et les constantes de diffusion estimés à partir des spectres des vies dans nos échantillons sont rapportées dans le tableau VIII.

Poudre	S (m ² /g)	R (Å)	ϕ_2	τ_2 (nsec)	$(10^{-4} D_2^2 / \text{sec})$	Λ_2 (Å)	Λ_p (Å)
SiO ₂	180±20	76±8	0,48±0,04	1,8±0,2	0,6±0,2	46±7	≈12
Al ₂ O ₃	130±15	77±8	0,14±0,02	3,5±0,5	2,6±1,3	140±40	≈18
MgO	110±15	82±8	0,05±0,02	2,8±0,4	14±7	270±80	≈48

TABLEAU VIII

Caractéristiques de différentes poudres dans la diffusion du Ps.

Origine des poudres : SiO₂ (Degussa) Al₂O₃ (Touzart et Matignon) MgO (Prolabo).

L'ortho-positonium observé, dont nous venons de définir les caractéristiques de diffusion, ne représente que 75 % de la totalité du positonium présent dans la poudre. Dans 25 % des cas, celui-ci est en effet formé sous forme para dont la vie caractéristique ($\tau_p = 1,25 \cdot 10^{-10}$ s) est trop brève pour être correctement mesurée. Ce para-positonium diffuse lui aussi dans le grain et possède donc une certaine probabilité d'échappement ; mais le taux d'annihilation par pick-off est très faible devant le taux d'annihilation libre de sorte qu'il est impossible de distinguer expérimentalement les atomes susceptibles de s'échapper et donc de mesurer la constante de diffusion du p-positonium. Cependant si l'on suppose qu'elle est très voisine de celle de l'ortho, ce qui paraît une hypothèse acceptable, son parcours moyen avant annihilation peut être évalué :

$$\Lambda_p = (2 D \tau_p)^{1/2} \quad (66)$$

Nous avons indiqué les ordres de grandeur de Λ_p pour les différents échantillons dans la dernière colonne du tableau précédent.

En remplaçant τ_2 par τ_p dans le calcul de β , la quantité de positonium susceptible de diffuser hors des grains peut encore être estimée à l'aide de la courbe théorique, figure 25.

Voisine de 10 % de tout le p-Ps formé dans la poudre de silice à $180 \text{ m}^2/\text{g}$ elle est de l'ordre de 30 et 60 % dans l'alumine et la magnésie.

1.3.2 - Influence de la température

Les variations de la probabilité d'annihilation par pick-off de l'o-positonium en fonction de la température, doivent fournir une information sur la nature du mécanisme de diffusion. Nous avons donc mesuré θ_2 pour différentes températures entre 100 et 450°K . Dans cette gamme de températures, les vies moyennes et la quantité totale d'o-positonium mesurées demeurent constantes, prouvant que la structure des grains n'est pas modifiée. Les variations de θ_2 résultent donc uniquement de l'influence de la température sur le mécanisme de diffusion. Toutefois, pour les échantillons d'alumine et de magnésie où le parcours moyen avant annihilation est grand, l'effet de la température sur les faibles probabilités de pick-off mesurées n'est pas décelable expérimentalement. Dans les échantillons de silice il est par contre possible de mettre en évidence une nette décroissance de θ_2 en fonction de la température (Cf. figure 26).

Dans l'hypothèse où l'o-positonium diffuse librement cette décroissance de θ_2 doit traduire une variation linéaire de D en fonction de $T^{1/2}$:

$$D = \frac{1}{3} \Lambda \langle v \rangle = \Lambda \left(\frac{kT}{3m} \right)^{1/2} \quad (67)$$

Aucune des deux droites ainsi tracées pour les poudres de 50 et $180 \text{ m}^2/\text{g}$ ne passe par l'origine et les libres parcours moyens Λ calculés à partir des pentes, de l'ordre de 10^{-2} Å , ne paraissent pas réalistes pour un modèle de diffusion libre.

Si l'on admet que l'atome d'o-positonium lié dans les défauts ou interstices du grain diffuse en sautant de défauts en défauts la relation exprimant la variation de D en fonction de la température sera de la forme :

$$D = D_0 e^{-\frac{\Delta E}{RT}} \quad (68)$$

où ΔE représente l'énergie d'activation qui doit être faible pour que le processus de diffusion demeure important à basse température.

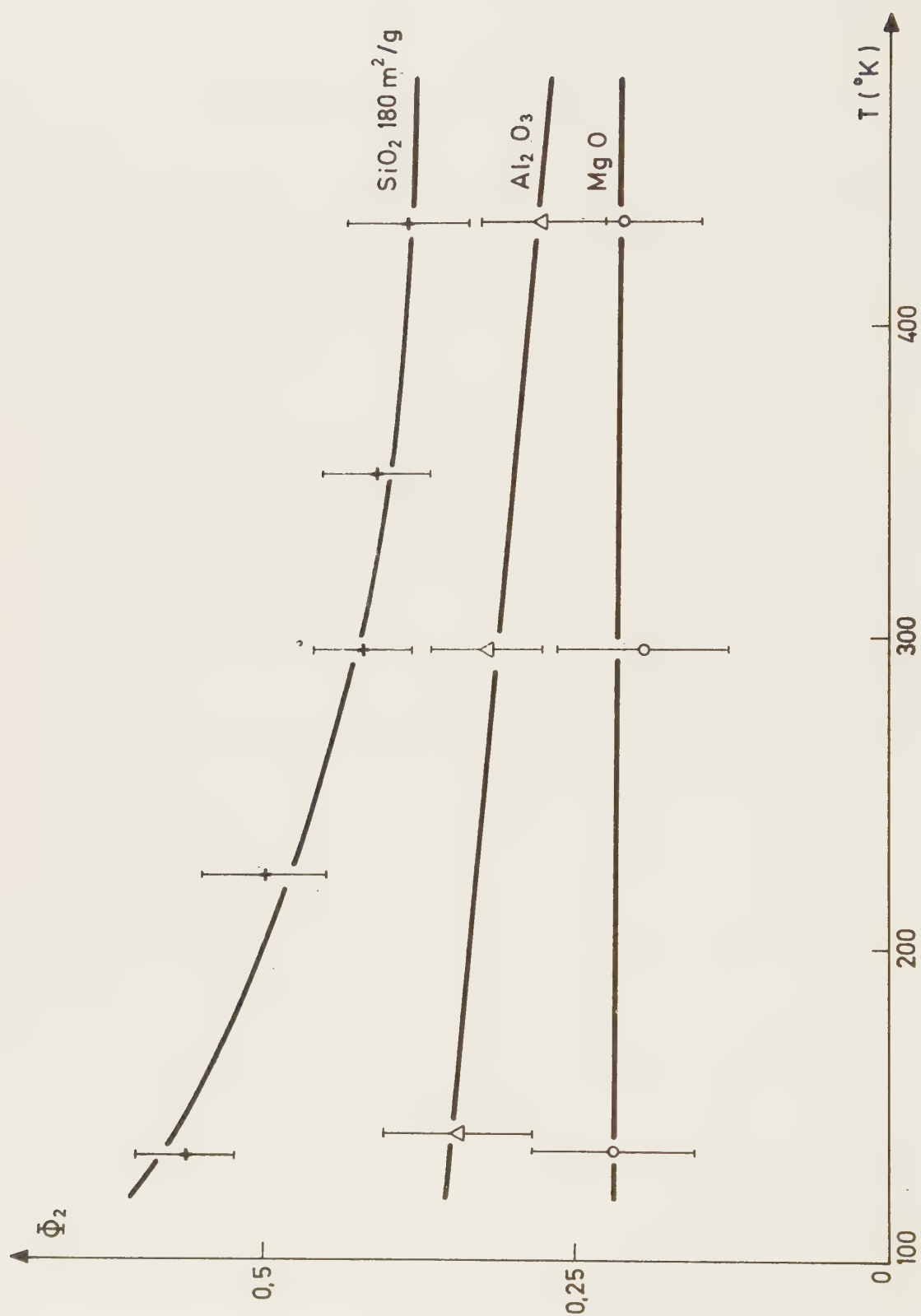


Fig. 26. Probabilité de "pick-off" en fonction de la température pour divers échantillons.

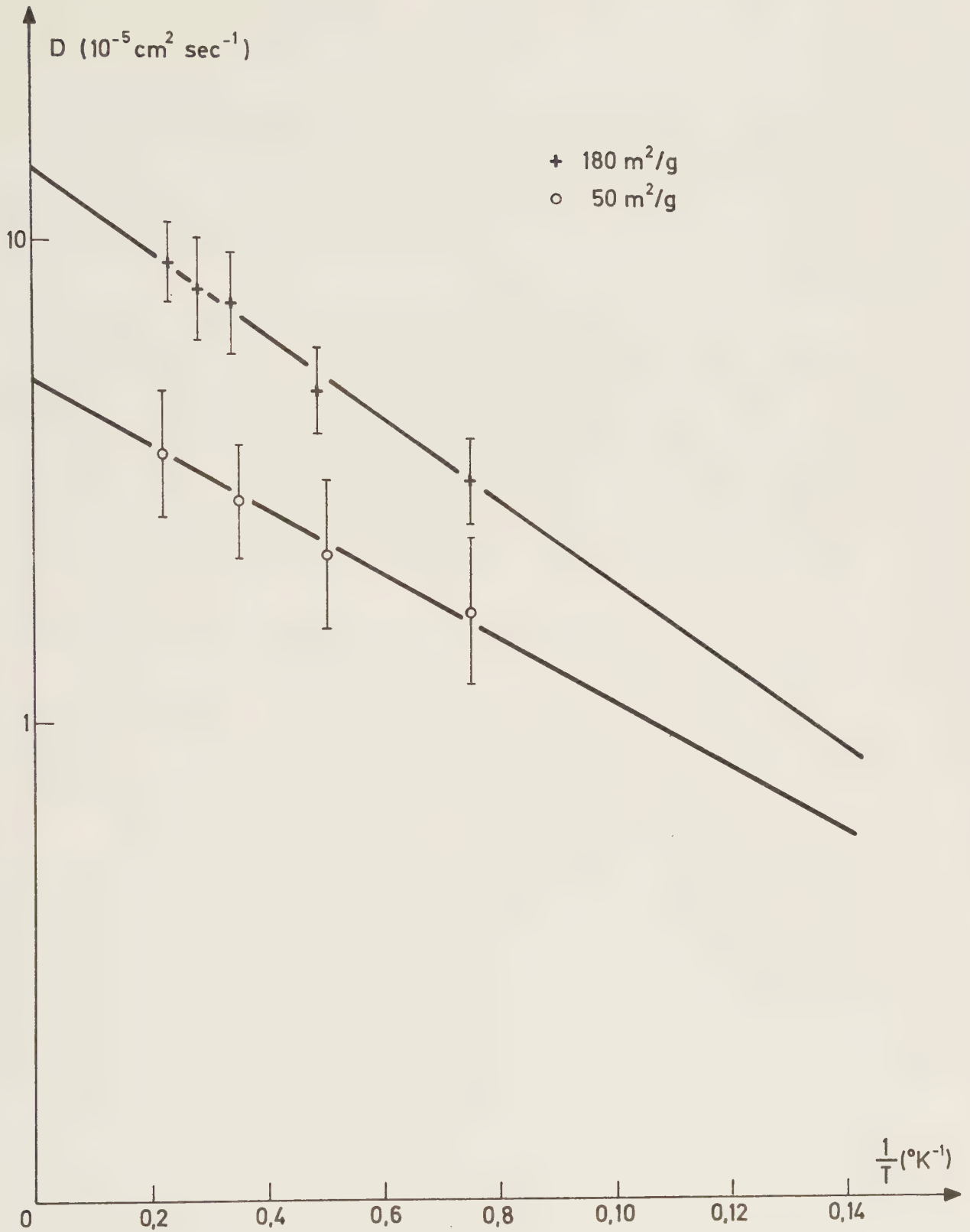


Fig.27 - Variations de la constante de diffusion en fonction de la température dans la silice.

Les valeurs mesurées pour D portées en échelle semi-logarithmique en fonction de $\frac{1}{T}$ s'alignent pour les deux échantillons (figure 27).

L'énergie d'activation que l'on peut évaluer à partir de la pente de ces droites, respectivement $(1,7 \pm 0,8)$ et $(1,4 \pm 1) \times 10^{-2}$ eV, est faible mais d'un ordre de grandeur raisonnable pour le "hopping" de trous positifs.

Il n'est toutefois pas possible de spécifier sans ambiguïté le processus microscopique de déplacement du positonium. La diffusion décrit en effet ce déplacement à une échelle macroscopique et c'est à cette échelle seulement qu'elle exige l'incohérence du mouvement. Les mesures de diffusion dans la gamme de température étudiée ne sont donc pas suffisantes pour distinguer entre divers mécanismes de déplacement présentant cette incohérence et donc correctement reproduits par l'équation de diffusion.

CHAPITRE II - PROPRIETES DU POSITONIUM DANS LE VOLUME LIBRE

De l'existence libre de l'o-Ps dans le vide intergranulaire il est possible de dégager un certain nombre de propriétés. Ce résultat sous entend en effet que la probabilité de pénétrer à l'intérieur d'un grain pour un atome de positonium situé dans le vide est extrêmement faible. Il prouve en outre que le taux de "pick-off" résultant de l'interaction avec les grains doit être négligeable devant le taux d'annihilation libre. Nous présentons un certain nombre d'arguments destinés à expliquer ces propriétés.

II.1 - Probabilité de diffusion à l'intérieur des grains

Dans l'étude de la diffusion du positonium, la condition aux limites que nous avons posée suppose qu'un Ps qui a diffusé hors du grain est incapable de pénétrer à nouveau dans un grain. Si l'excellent accord de la théorie avec l'expérience confirme cette hypothèse il apparait intéressant d'en rechercher les raisons physiques.

Cette interdiction de pénétrer dans un grain, pour le positonium situé dans le volume libre, peut avoir une origine énergétique. En effet, l'atome de positonium dans le vide peut être dans un état d'énergie inférieur à celui qui caractérise sa localisation dans le solide. Soit un atome de Ps situé dans le vide à l'extérieur d'un cristal ionique supposé exempt de défauts. Son énergie de liaison est $E = \frac{1}{2} Ry$. Ce même atome de Ps à l'intérieur du cristal aura une énergie de liaison de $\frac{1}{2} Ry + \chi_{Ps} - \chi_{e-} - \chi_{e+}$ 24 , où χ_{Ps} , χ_{e-} et χ_{e+} représentent les affinités du cristal pour le Ps, l'électron et le positon respectivement. La différence d'énergie de liaison du Ps dans ces deux états est :

$$-\Delta E = \chi_{Ps} - \chi_{e-} - \chi_{e+} . \quad (69)$$

Si $\Delta E < 0$ le Ps pourra pénétrer dans le grain où il sera dans un état de moindre énergie. Si au contraire $\Delta E > 0$ le Ps devra posséder une énergie cinétique hors du cristal supérieure à ΔE pour franchir la barrière de potentiel à la surface du cristal. Or pour un cristal ionique ΔE est de l'ordre de 1 à 2 ev [24], et la pénétration du Ps dans le cristal sera énergétiquement interdite.

Si un certain nombre de défauts sont présents dans le cristal cherchons dans quelle mesure cette interdiction peut être levée. Le Ps localisé dans un défaut sera dans un état d'énergie inférieur à celui qui caractérise sa présence dans le cristal parfait car :

$$\Delta E' = (-\chi_{Ps} + \chi_{e^-} + \chi_{e^+})_{\text{défaut}} < \Delta E. \quad (70)$$

Même en supposant que $\Delta E' = 0$, c'est à dire, que l'énergie de liaison du Ps dans le défaut est de 0,5 Ry comme dans le vide, un atome de Ps situé à l'extérieur du cristal devra néanmoins franchir la barrière de potentiel présente à la surface du cristal pour pénétrer dans le défaut. Dans cette hypothèse il pourrait éventuellement franchir cette barrière par effet tunnel. Si au contraire $\Delta E' \neq 0$ le Ps devra posséder dans le vide une énergie cinétique au moins égale à $\Delta E'$ pour pénétrer dans un défaut du cristal même par effet tunnel, sinon ce mécanisme de pénétration lui sera aussi interdit.

Pour estimer la probabilité de ce mécanisme il est donc nécessaire d'évaluer l'ordre de grandeur de $\Delta E'$ par rapport à l'énergie cinétique d'un atome de Ps dans l'espace intergranulaire.

Dans le puits de potentiel que constitue le défaut du cristal le Ps possède une énergie de point zéro E_0 qui dépend de la largeur du puits. D'autre part il suffit d'un gain d'énergie de l'ordre de 10^{-2} ev pour que cet atome de Ps puisse diffuser dans un autre défaut ou à l'extérieur du grain. La mesure de E_0 fournira donc l'ordre de grandeur de la profondeur du puits, $E_0 \neq \Delta E - \Delta E'$. Il sera donc possible d'évaluer $\Delta E'$ connaissant ΔE .

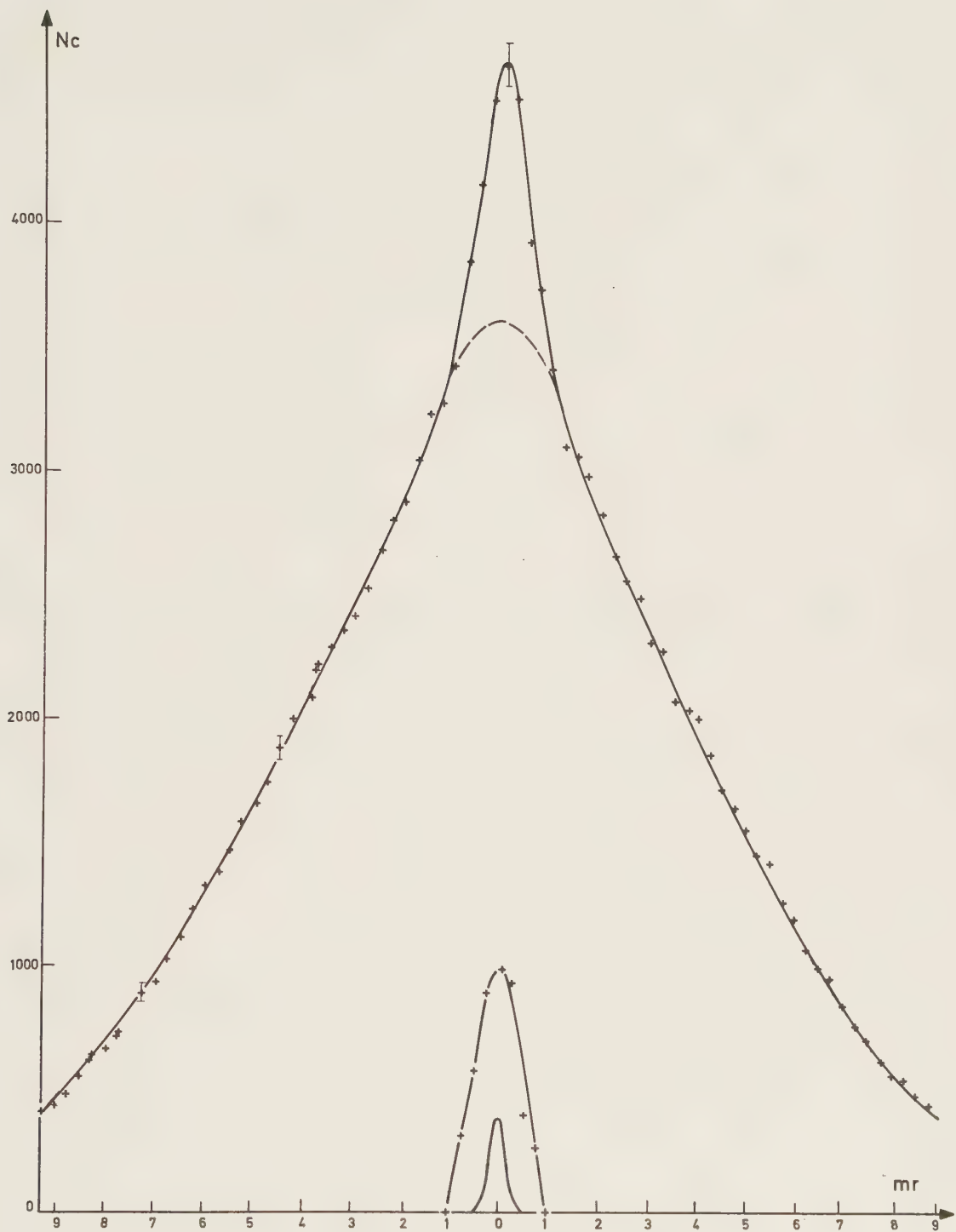


Fig.29_ Corrélation angulaire des γ d' annihilation dans MgO

Cette valeur de E_o doit être la même que l'atome de Ps considéré soit de l'o-Ps ou du p-Ps. Or l'énergie cinétique E_o avec laquelle les atomes de p-Ps s'annihilent dans les défauts provoquera un élargissement de la composante étroite qui carac-

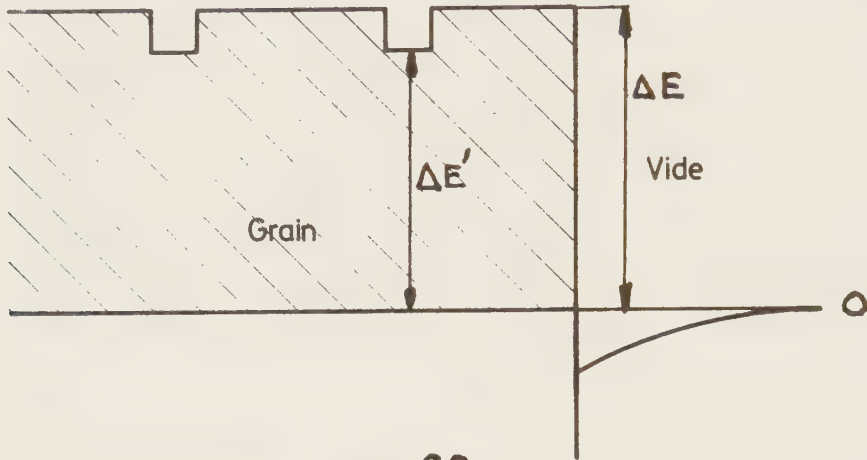


Fig.28

térise la corrélation angulaire des 2 γ d'annihilation du p-Ps thermalisé. Si la vitesse du centre de masse est suffisante, cet élargissement sera supérieur à la résolution angulaire et, la mesure de la largeur à mi-hauteur Δ du pic obtenu permettra d'estimer la quantité de mouvement p_o du Ps au moment de son annihilation. L'énergie E_o sera alors donnée par :

$$E_o = \frac{p_o^2}{2M} \quad (71)$$

où $M = m_{e+} + m_{e-}$ est la masse de l'atome de Ps.

A l'aide d'un dispositif présentant une résolution angulaire de 0,3 mr [66] nous avons étudié la corrélation angulaire des γ issus d'annihilations dans des pastilles de magnésie et de silice réalisés par compression à 4 t/cm² de nos échantillons. L'analyse des courbes ainsi obtenues (figure 29) donne des valeurs de Δ de 1 et 1,8 mr respectivement pour MgO et SiO₂, soient des p_o de 1 et 1,8 10⁻³ mc.

On peut donc estimer que l'énergie de point zéro dans un défaut est d'environ 0,125 ev dans la magnésie et 0,4 ev pour la silice.

Pour une géométrie sphérique E_o peut s'exprimer en fonction du rayon du défaut r_d :

$$E_o = \frac{\pi^2 \hbar^2}{8M r_d^2} \quad (72)$$

ou encore :

$$r_d = \frac{\pi \hbar}{2p} \quad (73)$$

soit une valeur de r_d de l'ordre de $6 \text{ \AA}$ pour la magnésie et $3 \text{ \AA}$ pour la silice. Dans le vide où $r \simeq 100 \text{ \AA}$, cette énergie est pratiquement nulle.

Si $\Delta E \simeq 1 \text{ ev}$, l'énergie cinétique minimum que doit acquérir le Ps pour pénétrer dans un défaut est donc $\Delta E' \simeq 0,9 \text{ ev}$ pour MgO et $\Delta E' \simeq 0,6 \text{ ev}$ pour SiO_2 . Ces énergies de vingt à quarante fois l'énergie thermique expliquent donc pourquoi la diffusion du Ps du vide dans un défaut est interdite.

Une compression des poudres à 4 t/cm^2 qui ne réduit les distances intergranulaires que d'un facteur inférieur à 2 ne permet pas de réduire de manière notable cette différence d'énergie. Pour lever cette interdiction il serait nécessaire d'amener les grains à des distances inférieures aux dimensions des défauts.

A partir de la densité des grains de silice ($d_1 \simeq 2,2 \text{ g/cm}^3$) et du volume moyen des défauts, v_d , le nombre moyen de défauts n présents dans un grain peut être évalué par comparaison avec un grain de quartz ($d_2 = 2,7 \text{ g/cm}^3$) de même volume V .

$$d_1 = d_2 \left(1 - \frac{n v_d}{V} \right) \quad (74)$$

Pour la poudre de silice la plus divisée ($S = 380 \text{ m}^2/\text{g}$) dont le rayon moyen du grain est de $36 \text{ \AA}$, le nombre moyen de défauts par grain est $\simeq 310^2$ et la distance moyenne entre défauts $l \simeq 10 \text{ \AA}$. Cette valeur de l reportée dans l'expression de la constante de diffusion (48) b permet de calculer le temps moyen de diffusion τ_d :

$$\tau_d = \frac{l^2}{2D} \neq 10^{-10} \text{ s.} \quad (75)$$

soit une valeur très voisine de la vie moyenne du para-positonium ($1,25 \cdot 10^{-10}$ s) et près de vingt fois inférieure à la vie-moyenne τ_2 de l'ortho-positonium à l'intérieur du grain. Si donc l'ortho-positonium peut diffuser dans plusieurs défauts avant de sortir du grain ou de s'annihiler par "pick-off", le para-positonium, au contraire, aura une très forte probabilité de s'annihiler dans le défaut où il a été formé.

Avec une résolution angulaire suffisante, la composante étroite de corrélation angulaire pourrait donc éventuellement fournir une information sur la distribution statistique du volume des défauts :

$$p(\bar{R}, \beta) = \int_0^\infty \frac{e^{-\left(\frac{\bar{R}-R}{\beta}\right)^2}}{R} dR \quad (76)$$

11.2 - Taux de pick-off du positonium dans l'espace intergranulaire

Durant son existence dans le vide intergranulaire, la probabilité d'interaction de l'o-Ps avec les grains de poudre doit être très faible pour que le phénomène de pick-off n'affecte pas sa vie caractéristique. Le taux d'annihilation par "pick-off" dans un grain est voisin de $\lambda_{p.o.} = \frac{1}{\tau_2} - \frac{1}{\tau_{3\gamma}} \approx 5 \cdot 10^8 \text{ sec}^{-1}$ alors que le taux d'annihilation à 3γ $\lambda_{3\gamma} = 7 \cdot 10^6 \text{ sec}^{-1}$.

Pour que la destruction par collision avec un grain ne soit pas décelable expérimentalement, elle doit être inférieure à l'erreur sur la mesure de vie moyenne $\pm 7\%$. Il en résulte que le taux d'annihilation par pick-off ($\lambda_{p.o.}$) eff. des grains doit être inférieur à $0,07 \times \lambda_{3\gamma} = 5 \cdot 10^5 \text{ sec}^{-1}$.

Or ($\lambda_{p.o.}$) eff dépend du recouvrement que peut présenter la composante positon de la fonction d'onde du positonium localisé dans le vide avec la fonction d'onde du grain. Pour que ($\lambda_{p.o.}$) eff $< 5 \cdot 10^5 / \text{sec}$ il est nécessaire que ce recouvrement demeure inférieur à $\frac{(\lambda_{p.o.})_{\text{eff}}}{\lambda_{p.o.}} \approx 10^{-3}$.

Le même type de problème se présente dans les substances moléculaires où existe un certain volume libre par molécule accessible à l'atome de positonium dont la vie moyenne est abrégée par pick-off résultant du recouvrement de sa fonction d'onde avec celle du réseau.

Ce problème de mécanique quantique a été résolu par Brandt et Coll [26] et Brandt [44] pour un modèle à "cœur dur" en utilisant l'approximation de Wigner-Seitz. Ils sont ainsi parvenus à exprimer le taux de pick-off en fonction de la densité électronique ρ_o dans le "volume exclu" V_o associé à chaque molécule et d'une fonction $F(V_o, r_o, r_1)$ qui rend compte du degré de recouvrement des fonctions d'onde :

$$\lambda = \frac{\pi r_o^2 c \rho_o}{1 + F(U_o, r_o, r_1)} = \frac{\lambda_o}{1 + F} \quad (77)$$

où U_o et r_o sont respectivement la hauteur et le rayon de la barrière de potentiel du cœur, et r_1 le rayon de la cellule qui peuvent être associées à chaque molécule.

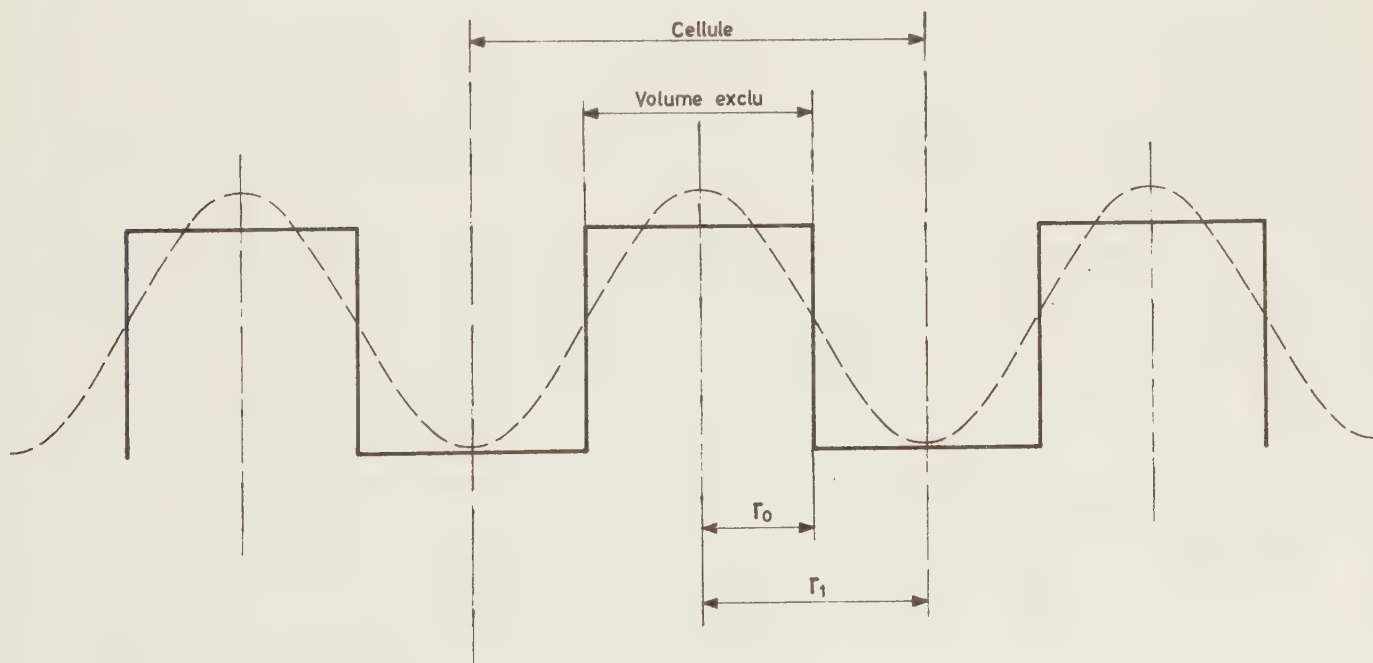


Fig. 30

La variation de F en fonction du volume libre $v^* = \frac{V_1}{V_0}$ pour différentes géométries (plan, sphère et cylindre) ont pu être ainsi calculées en fonction du paramètre de diffusion défini comme :

$$P_0 r_0^2 = \frac{4m}{\hbar^2} \cdot U_0 r_0^2 \quad (78)$$

Ces résultats peuvent servir à déterminer l'ordre de grandeur du taux de pick-off de l'o-Ps localisé dans le volume libre intergranulaire.

La poudre peut en effet être visualisée comme formée de cellules sphériques de rayon r_1 dont le centre se trouve occupé par un grain de rayon r_0 à l'intérieur duquel le taux de pick-off est $\lambda_{p.o.} \cong 5 \cdot 10^8 \text{ sec}^{-1}$. Le taux de pick-off effectif du positonium dans le volume libre sera donné par :

$$(\lambda_{p.o.})_{\text{eff}} = \frac{\lambda_{p.o.}}{1 + F} \quad (79)$$

Les diagrammes publiés des variations de $(1 + F)^{-1}$ en fonction du volume libre v^* pour différentes valeurs de $P_0 r_0^2$ sont limitées à $v^* = 2,5$; or, dans nos échantillons, le volume libre varie de 7 pour les poudres de fortes densités apparentes, à 45 pour la poudre de SiO_2 à $380 \text{ m}^2/\text{g}$.

Il s'avère donc nécessaire de procéder à une extrapolation afin d'estimer l'ordre de grandeur $(1 + F)^{-1}$. Pour les grandes valeurs de v^* , il apparaît raisonnable d'assimiler la décroissance de $(1 + F)^{-1}$ qui représente le degré de recouvrement des "queues" de la fonction d'onde du positonium avec le grain à une exponentielle. Il est alors aisé d'extrapoler ces courbes en échelle semi-logarithmique pour les fortes valeurs de v^* . Le paramètre de diffusion qu'il convient de choisir pour chacune des poudres dépend du rayon du grain r_0 et de la hauteur de la barrière de potentiel U_0 .

Les considérations au chapitre II.1 concernant les variations d'énergie de point zéro entre le vide et un défaut, nous permettent d'affirmer que U_0 est au moins égal à 0,1 ev. Il est donc possible d'évaluer $P_0 r_0^2$ pour les différentes poudres (cf. Tableau IX).

Echantillons	S_m^2/g	$\bar{r}_o^{\circ}(\text{\AA})$	$P_o r_o^2$	V^*	$(1 + F)^{-1}$
SiO_2	380	36	≥ 75	44	$\ll 10^{-4}$
SiO_2	300	45	≥ 100	44	$\ll 10^{-4}$
SiO_2	180	75	≥ 300	35	$\ll 10^{-4}$
SiO_2	50	270	≥ 3500	7	$\ll 10^{-4}$
MgO	110	80	≥ 350	10	$\ll 10^{-4}$
MgO comprimé à 11 t/cm^2	110	80	≥ 350	3	$\leq 5.10^{-3}$
Al_2O_3	130	77	≥ 300	3,5	$\leq 5.10^{-3}$

TABLEAU IX

Les valeurs de $(1 + F)^{-1}$ que l'on peut alors déterminer graphiquement demeurent nettement inférieures à 10^{-3} pour tous les échantillons sauf pour l'alumine ($\simeq 5.10^{-3}$), où précisément la vie caractéristique de l'ortho-positonium n'est jamais atteinte même après traitement thermique à 600°C sous vide. Pour $(1 + F)^{-1} = 5.10^{-3}$ la vie du positonium dans l'espace intergranulaire est en effet de l'ordre de :

$$\tau_3 = \frac{1}{5 \cdot 10^{-3} \lambda_{p.o.} + \lambda_{3\gamma}} = 10^{-7} \text{ s} \quad (80)$$

Une valeur de τ_3 très voisine de 10^{-7} s doit aussi être observée dans une pastille de magnésie obtenue par compression sous vide. Pour la même pastille fabriquée dans l'air la variation relative de vie consécutive au pick-off des grains sera toutefois moins importante en raison du quenching de l'oxygène de l'air. En effet, si dans la poudre en présence d'air $\tau_3 = 7.10^{-8} \text{ s}$ cette valeur dans la pastille sera réduite à :

$$\tau_3 = \frac{1}{5 \cdot 10^{-3} \lambda_{p.o.} + \lambda_{0_2} + \lambda_{3\gamma}} = 6 \cdot 10^{-8} \text{ s} \quad (81)$$

soit une variation de 17 % seulement au lieu de 29 %.

Dans cette estimation du taux de "pick-off" provoqué par la présence des grains la possibilité d'adsorption du positonium à la surface d'un grain dans un puits potentiel de type Van der Waals est négligée. Une telle adsorption, en confinant l'atome de positonium au voisinage du grain, devrait cependant favoriser, en principe, ce type de pick-off et ce d'autant plus que la quantité de positonium adsorbée est grande. La vie longue devrait donc être sensiblement abrégée à basse température.

Or à 100°K la valeur mesurée de τ_3 demeure pratiquement égale à $1,4 \cdot 10^{-7} \text{ s}$, pour la silice.

L'hypothèse qui consiste à négliger l'adsorption du positonium dans l'estimation du pick-off des grains se trouve donc expérimentalement justifiée ; mais ce résultat n'en reste pas moins surprenant, car il peut résulter de deux propriétés très différentes du positonium :

a) à la température de l'azote liquide la proportion de positonium adsorbé est encore trop faible pour provoquer une variation sensible de τ_3 .

b) même adsorbé l'interaction du positonium avec la surface n'influe pas sur sa vie caractéristique.

S'il semble difficile d'apporter une preuve expérimentale qui permette de décider entre ces deux hypothèses, il est néanmoins possible d'avancer un argument qui prouve que, même adsorbé en surface, le pick-off dont peut avoir à souffrir l'o-Ps demeure négligeable. Soit un atome de P_s adsorbé à la surface d'un grain de rayon R_o dans un puits de potentiel en $\frac{1}{R^6}$. L'incertitude sur sa position à l'intérieur du puits est :

$$R_{P_s} - R_o \approx \frac{\hbar}{\sqrt{2m_{P_s} E_{P_s}(R)}} \quad (82)$$

où $E(R) = \frac{C}{R^6}$ représente son énergie de liaison.

Du point de vue de la cinétique des gaz, nous l'avons signalé dans la première partie, l'atome de P_s se comporte comme un atome d'hydrogène dont la masse ne serait que deux fois celle de l'électron. Il est donc possible d'utiliser cette analogie pour estimer les propriétés de l'atome du P_s vis à vis du phénomène d'adsorption. Un atome d'hydrogène adsorbé sur un grain dans le même puits de potentiel possèdera une énergie de liaison $E_{H_o}(R) = \frac{C}{R^6} \simeq 10^{-2}$ ev et ne sera pas éloigné de la surface de plus $R_H - R_o \simeq 1 \text{ Å}$. Or, dans nos échantillons $R_o \geq 36 \text{ Å}$ de sorte que $R_H \cong R_o$.

L'énergie de liaison du P_s peut donc s'écrire :

$$E_{P_s}(R) = E_H \cdot \left(\frac{R_o}{R_{P_s}} \right)^6 \quad (83)$$

Si l'on remplace E_{P_s} par cette expression dans l'équation (82) on obtient ,

$$\frac{R_{P_s}}{R_o} \simeq 2.$$

La probabilité d'annihilation du P_s par pick-off avec le grain sur lequel il est adsorbé sera donc égale à celle d'un atome de P_s non adsorbé localisé dans l'espace intergranulaire d'une poudre dont le volume libre est $v^* = 8$. Or, pour cette valeur de v^* , le taux d'annihilation par pick-off est négligeable devant le taux d'annihilation libre de l'o- P_s .

L'énergie de liaison du P_s adsorbé, calculée à partir de l'équation (82) est de l'ordre de 10^{-4} ev. A la température de l'azote liquide, la probabilité d'adsorption :

$$p_{ads} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^{E=kT} \frac{E^{1/2}}{(kT)^{3/2}} e^{-\frac{E}{kT}} dE$$

sera encore très petite 10^{-3} . A 1°K, elle sera de l'ordre de 90 %.

Cette adsorption du P_s à la température de l'hélium liquide doit pouvoir être décelée expérimentalement par un glissement de la fréquence caractéristique à laquelle sont induites les transitions $m = \pm 1 \rightarrow m = 0$ dans un champ magnétique de 20 000 gauss. La réalisation d'une telle expérience doit donc permettre de mesurer avec précision l'énergie d'adsorption du P_s ainsi que la quantité de P_s adsorbé.

QUATRIEME PARTIE

APPLICATIONS

CHAPITRE I - REALISATION DE SOURCES DE $o\text{-P}_s$ LIBRE

CHAPITRE II - QUENCHING DE l' $o\text{-P}_s$ par O_2 et NO A DIFFERENTES ENERGIES

CHAPITRE I - REALISATION DE SOURCES DE $o\text{-P}_s$ LIBRE

Une conséquence pratique qui découle directement des propriétés dynamiques du P_s dans les solides que nous venons de présenter est de rendre désormais réalisable la fabrication de sources intenses et compactes d' $o\text{-P}_s$ libre.

Il suffit en effet de noyer au sein d'une poudre, analogue à celles que nous avons utilisées, un radio-élément émetteur β^+ pour disposer d'une source d' $o\text{-P}_s$ de volume restreint. Si cette source est confectionnée sous vide l' $o\text{-P}_s$ présent dans l'espace intergranulaire vit librement et s'annihile avec émission de trois rayons γ . Le volume de ces sources peut encore être réduit par compression de la poudre sous forme de pastille et la quantité d' $o\text{-P}_s$ obtenue est directement proportionnelle à l'activité β^+ du radio-élément utilisé.

La faible dimension de ces sources est particulièrement intéressante dans un certain nombre d'expériences destinées à vérifier les propriétés de l'atome de P_s . Ainsi par exemple nous a-t-il été possible d'observer dans le spectre de temps de vie du positon la composante caractéristique du mélange d'une fraction de l'état singulet avec l'état triplet $m = 0$ du P_s provoquée par l'action d'un champ magnétique. La vie-moyenne τ'_3 ainsi mesurée et sa variation en fonction de l'intensité du champ au cours de la détermination de $P_3 \gamma$ (paragraphe III.3.2, deuxième partie) se sont révélées en très bon accord avec les prédictions théoriques.

Une autre caractéristique de l' $o\text{-P}_s$ qui n'a jamais été observée directement est le spectre continu d'énergie du rayonnement γ émis au cours des processus d'annihilation à 3γ et prédit par Ore et Powell [15]. Cette mesure devient désormais réalisable grâce à la faible dimension des sources qui peuvent à présent être fabriquées.

La détection des γ d'annihilation avec une bonne géométrie permet en effet de comparer dans les mêmes conditions deux spectres avec et sans formation de $o-P_s$ et la proportion d' $o-P_s$ s'annihilant librement est assez importante pour être observée par différence avec la technique décrite au paragraphe III.3.1 de la deuxième partie. La différence des spectres d'amplitude détectés par le détecteur au Ge (Li), corrigée de l'efficacité par absorption totale de ce détecteur fournit, en effet, le spectre d'énergie des gammas d'annihilation à trois photons. Inversement la connaissance de ce spectre permet d'obtenir la courbe d'efficacité d'un détecteur à semi-conducteur.

Sur cet exemple apparaît clairement comment la propriété originale de ces sources d'émettre un spectre γ continu en énergie bien défini peut faciliter l'étalonnage des détecteurs couramment utilisés en physique nucléaire. Elle doit en outre présenter un réel intérêt faisant appel à l'irradiation γ comme la radio-biologie et la chimie sous rayonnements.

D'autre part un certain nombre de propriétés encore mal connues de l' $o-P_s$ avec la matière sont susceptibles d'être précisées en particulier dans les gaz comme nous allons le montrer ci-après.

CHAPITRE II - QUENCHING DE l'o-P_s PAR O₂ ET NO A DIFFERENTES ENERGIES

Une étude théorique du mécanisme d'échange, à l'origine des propriétés spécifiques des molécules para-magnétiques, a été faite par Fraser [67] pour l'hydrogène. Il trouve que la section efficace d'échange diminue très vite en fonction de l'énergie. Pour vérifier ce résultat nous avons étudié l'influence de la température sur le quenching de l'o-P_s par l'oxygène et le bioxyde d'azote.

Dans un gaz rare le seul processus qui puisse provoquer une annihilation prématurée de l'o-P_s au cours d'une collision est le phénomène de pick-off dont la section efficace est de l'ordre de 10^{-21} cm^2 .

Dans la collision d'un atome d'o-P_s avec une molécule d'oxygène ou de bioxyde d'azote celui-ci peut être en outre converti en p-P_s. Les sections-efficaces mesurées à la température du laboratoire sont respectivement de l'ordre de 10^{-19} et 10^{-17} cm^2 . Pour ces deux molécules l'annihilation par pick-off apparaît donc comme un processus négligeable.

Le taux d'annihilation Γ obtenu par l'analyse du spectre de temps de vie et la somme du taux d'annihilation de l'o-P_s libre et du taux de quenching, Γ_q :

$$\Gamma = \Gamma_{\text{o-P}_s} + \Gamma_q \quad (84)$$

Le taux de quenching est proportionnel à la section efficace de quenching σ_q à la vitesse de l'atome d'o-P_s et à la concentration des molécules de gaz n :

$$\Gamma_q = \sigma_q n v \quad (85)$$

Si $\overline{\sigma}_Q$ dépend de la vitesse $\sigma_Q(v)$ la valeur mesurée à une température donnée T n'est pas $\overline{\sigma}_Q$ mais une valeur moyenne $\overline{\overline{\sigma}}_Q$ qui tient compte de la distribution $f(v)$ des atomes de P_s :

$$\overline{\overline{\sigma}}_Q = \int_0^{\infty} \overline{\sigma}_Q(v) f(v) dv \quad (86)$$

où, $f(v)$ est la distribution maxwellienne des vitesses :

$$f(v) = 4 \left(\frac{M^3}{2 K^3 T^3} \right)^{1/2} v^2 e^{-\frac{1}{2} \frac{Mv^2}{KT}} \quad (87)$$

M étant la masse du P_s et K la constante de Boltzman.

Quand la fonction $\overline{\sigma}_Q(T)$ est connue, l'équation (86) peut être résolue en utilisant la transformée de Laplace. L'expression de $\overline{\sigma}_Q(v)$ ainsi obtenue, reportée dans l'équation (85) permet alors de calculer $\overline{\sigma}_Q(v)$.

La mesure des valeurs de $\overline{\sigma}_Q$ pour différentes températures et la détermination empirique de la fonction $\overline{\sigma}_Q(T)$ à partir de la courbe obtenue peut donc servir à estimer la loi de variation de la section efficace de quenching en fonction de la vitesse.

A partir de la formule (85) la valeur de $\overline{\sigma}_Q$ peut être exprimée en fonction de la température et de la pression p :

$$\overline{\sigma}_Q = 0,635 \cdot 10^{-26} \frac{\overline{\sigma}_Q}{P_{(atm)}} \left(\frac{300}{T} \right)^{1/2} \quad (88)$$

Les valeurs $\overline{\sigma}_Q$ que nous avons mesurées pour différentes pressions d'oxygène pour $T = 300^\circ K$ et $T = 400^\circ K$ ne font pas apparaître de décroissance de $\overline{\sigma}_Q$ significative. Seules les valeurs obtenues à $470^\circ K$ sont inférieures aux précédentes d'environ 30 % (cf. tableau X).

$P_{(atm)}$	$\overline{\sigma}_\varphi \times 10^{-19} \text{ cm}^2$		
	$T = 300^\circ K$	$T = 400^\circ K$	$T = 470^\circ K$
1	$2,9 \pm 0,4$	$2,4 \pm 0,3$	$1,7 \pm 0,2$
0,7	$2 \pm 0,3$	$2,2 \pm 0,3$	$1,8 \pm 0,2$
0,4	$2 \pm 0,2$	$2,3 \pm 0,3$	$1,3 \pm 0,2$

TABLEAU X

Sections efficaces de quenching de l'oxygène à différentes températures et sous différentes pressions.

Pour une élévation de température de 300 à 500°K le calcul de Fraser pour l'hydrogène prévoit une décroissance de $\sigma(v)$ de l'ordre de 20 %. Des mesures complémentaires sont cependant nécessaires pour confirmer la variation de $\overline{\sigma}_\varphi(T)$ observée. Le fait que $\overline{\sigma}_\varphi$ demeure pratiquement constant entre 300 et 400°K peut en partie résulter de l'adsorption à 300°K d'une fraction des molécules d'oxygène sur la surface de la poudre d'où une valeur de $\overline{\sigma}_\varphi$ sous-estimée à cette température.

La section-efficace de quenching de l'oxyde d'azote est plus de cent fois supérieure à celle de l'oxygène et il est nécessaire pour la mesure de travailler à des pressions de l'ordre de 10^{-3} mm de Hg de N₂O. L'étanchéité de l'enceinte à si basse pression doit être particulièrement bonne et il est plus prudent de réaliser un mélange N₂O + Argon afin de travailler à une pression voisine de 1 atmosphère.

Dans l'enceinte contenant la poudre nous avons introduit 8 cm³ de N₂O, dans les conditions normales de température et de pression, et complété avec de l'argon jusqu'à une pression de 0,7 atmosphère.



Fig. 31- Variations de la section efficace de quenching de NO en fonction de la température

Avec la pression partielle de $4,7 \cdot 10^{-3}$ mm Hg régnant dans l'enceinte le taux de quenching est encore voisin de celui de l'oxygène à une atmosphère et le pick-off provoqué par la présence d'argon demeure encore négligeable. La section efficace $(\overline{\tau}_\varphi)_{\text{NO}}$ mesurée diminue d'un facteur dix de 300 à 500°K, figure 31, soit une variation plus forte que celle calculée par Fraser. La valeur obtenue à 200°K indique certainement qu'une fraction importante des molécules de NO sont adsorbées à la surface de la poudre à cette température.

Le nombre de mesures effectuées dans l'intervalle 300 à 500°K n'est cependant pas suffisant pour espérer déterminer correctement $(\overline{\tau}_\varphi)_{\text{NO}}$, c'est pourquoi nous venons d'entreprendre une étude plus systématique afin de mieux cerner la courbe $(\sigma_Q(T))_{\text{NO}}$. Il est à remarquer que la mesure de $\overline{\tau}_\varphi(T)$ à basse température serait susceptible de fournir d'intéressantes informations sur les propriétés d'adsorption de NO si la courbe $\overline{\tau}_\varphi(v)$ théorique était connue.

L'étude des propriétés d'interaction de l'o-Ps dans d'autres types de gaz peut aussi être envisagée à condition de disposer d'un convertisseur temps-amplitude possédant une bonne linéarité sur une large gamme. L'interaction de l'o-Ps dans le chlore, et l'argon où des résonances d'annihilation ont été signalées [68,69], pourrait notamment être précisée.

CONCLUSION

En conclusion, cette étude de l'annihilation du positon dans des solides en poudre a permis d'établir les propriétés suivantes :

- Le positon peut former du positonium dans les défauts susceptibles d'exister dans la structure de certains cristaux ioniques.
- L'ortho-positonium ainsi créé diffuse dans le solide de défauts en défauts avant de s'annihiler.
- Le para-positonium ne vit pas assez longtemps pour diffuser et s'annihile en général dans le défaut où il a été formé.
- Quand le parcours de diffusion avant annihilation de l'O-P_s est du même ordre de grandeur que les dimensions des grains de poudre, celui-ci peut échapper dans le vide intergranulaire.
- Dans l'espace intergranulaire, l'interaction de l'O-P_s avec la surface du grain, même adsorbé, est négligeable tant que le volume libre reste grand devant le volume du grain.
- La quantité de positonium adsorbé n'est importante qu'au voisinage du zéro absolu.

Ces propriétés du positon peuvent être utilisées pour obtenir un certain nombre de caractéristiques des solides désordonnés, tels que la densité et le volume des défauts présents dans la structure cristalline. Il est d'autre part possible d'estimer la surface spécifique d'une poudre constituée de particules dont l'une des dimensions est de l'ordre de grandeur du parcours de diffusion.

Ces résultats apportent enfin une méthode originale pour fabriquer des sources compactes et intenses d'ortho-positonium libre. De telles sources, outre l'intérêt qu'elles présentent pour l'étude des interactions du positonium dans les gaz ou les phénomènes de surface, doivent trouver de nombreuses applications dans d'autres domaines en raison du rayonnement γ d'énergie continu qu'elles émettent.



BIBLIOGRAPHIE

- [1] ANDERSON, C.D.
 Science 76, 238, 1932

- [2] BLACKETT, P. M.S. et OCCHIALINI, G.P.S.
 Proc. Roy. Soc. A. 139, 699, 1933

- [3] THIBAUD, J.
 C.R. Académie des Sciences 197, 1629, 1933
 Phys. Rev. 45, 781, 1934

- [4] SPEES, A.H. et ZAHN, C.T.
 Phys. Rev. 58, 861, 1940

- [5] PAGE, L.A., STEHCE, P. et GUNST, S.B.
 Phys. Rev. 89, 1273, 1953

- [6] SHEARER, J. et DEUTSCH, M.
 Phys. Rev. 76, 462, 1949

- [7] SHEARER, J. et DEUTSCH, M.
 Phys. Rev. 82, 336, 1951

- [8] CURIE, I. et JOLIOT, F.
Journal de Physique 4, 21, 496, 1933
- [9] DIRAC, P.A.M.
Proc. Camb. Phil. Soc. 26, 361, 1930
- [10] ORE, A.
Univ. Bergen Arbok n° 9, n° 12, 1949
- [11] WHEELER, J.A.
Ann. N.Y. Acad. Science 48, 219, 1946
- [12] PIRENNE, J.
Arch. des Sciences Physiques et Naturelles 29, 121, 207, 1947
- [13] LANDAU, L.D.
Dokl. Akad. Nank. SSSR 60, 207, 1948
- [14] YANG, C.N.
Phys. Rev. 77, 242, 1950
- [15] ORE, A et POWELL J.L.
Phys. Rev. 75, 1696, 1949
- [16] MOHOROVICIC, S.
Astron. Nacht. 253, 94, 1934
- [17] RUARK, E.
Phys. Rev. 68, 278, 1945

- [18] HYLLERAAS, E.
Phys. Rev. 71, 491, 1947
- [19] HYLLERAAS, E.A. et ORE, A.
Phys. Rev. 71, 493, 1947
- [20] ORE, A.
Phys. Rev. 71, 913, 1947
- [21] BERESTETZKI, V.B.
Zhurn Exp. Téor. Fiz SSSR, 19, 673, 1130, 1949
- [22] FERRELL, R.A.
Phys. Rev. 84, 858, 1951
- [23] KARPLUS, R. et KLEIN, A.
Phys. Rev. 87, 848, 1952
- [24] FERRELL R.A.
Rev. Mod. Phys. 28, 308, 1956
- [25] WALLACE, P.R.
Phys. Rev. 100, 738, 1955
- [26] BRANDT, W. BERKO, S. WALKER, W.
Phys. Rev. 120, 1289, 1960
- [27] DEUTSCH, M.
Phys. Rev. 82, 455, 1951

- [28] POND, T.A.
Phys. Rev. 85, 489, 1952

- [29] FERRELL, R.A.
Phys. Rev. 110, 1355, 1958

- [30] NEWTON, T.D.
Phys. Rev. 74, 490, 1950

- [31] BAY, Z.
Phys. Rev. 77, 419, 1950

- [32] BAY, Z. HENRI, V.P. et KANNER, H.
Phys. Rev. 100, 1197, 1955

- [33] VLASOV N.A. et TSIRELSON E.A.
Dokl. Akad. Nank. SSSR, 59, 879, 1948

- [34] LANG, L.G. et DEBENEDETTI, S.
Phys. Rev. 108, 914, 1957

- [35] STEWART, A.T.
Phys. Rev. 99, 594, 1955

- [36] HEINBERG, M. et PAGE, L.
Phys. Rev. 107, 1589, 1957

- [37] DEZAFRA, R.L. et JOYNER, W.T.
Phys. Rev. 112, 19, 1958

- [38] RICH, J.A.
Phys. Rev. 81, 140, 1951
- [39] DEBENEDETTI, S. et SIEGEL, R.
Phys. Rev. 85, 371, 1952
- [40] DEUTSCH, M.
Phys. Rev. 83, 866, 1951
- [41] HEYMANN, F.F., OSMON, P.E., VEIT, J.J. et WILLIAMS, W.F.
Proc. Phys. Soc. 78, 1038, 1961
- [42] BISI, A., FIORENTINI, A. ZAPPA, L.
Phys. Rev. 131, 1023, 1963
- [43] GOLDANSKII, V.I., PROKOP'EV, E.P.
Sov. Phys. Solid State, 6, 2641, 1964
- [44] BRANDT W.
Positron Annihilation Conf. 155 - Acad. Press, 1967
- [45] BRANDT W., WAUG H.F., LEVY P.W.
B.N.L. 12 660 Symp. Centres color. Rome, 1968
- [46] BUSSOLATI C., ZAPPA L.
Phys. Rev. 136 A 657, 1964
- [47] BISI A., BUSSOLATI C., COVA S., ZAPPA L.
Phys. Rev. 141, 348, 1966

- [48] LØVSETH J.
Phys. Norvegica 1, 145, 1963
- [49] BERTOLACCINI M., ZAPPA L.
A publier
- [50] BERKO S., HEREFORD F.L.
Rev. Mod. Phys. 28, 299, 1956 .
- [51] GERHOLM T.
Arkiv Fys. 10, 523, 1956
- [52] SUNYAR A.
Bull Amer Phys. Soc. 2, 37, 1957
- [53] PEIERLS R.
Proc. Phys. Soc. (London) A 149, 467, 1935.
- [54] BLAUGRUND A.E.
Physica 25, 185, 1959
- [55] CELITANS G.J., GREEN J.
Proc. Phys. Soc. 83, 833, 1964.
- [56] FRAISSARD J.
Thèse - Rapport CEA 2129, 1962
- [57] PAULIN R., AMBROSINO G.
G.R. Acad. Sciences 260, 6591, 1965

- [58] PAULIN R., AMBROSINO G.
Proc. Positon Annihilation conf. Acad. Press p. 345; 1967
- [59] PAULIN R., AMBROSINO G.
C.R. Acad. Sciences, 263, 267; 1966
- [60] FIORENTINI A.
Phys. Let. 25 A, 401; 1967
- [61] MILLS A.P.
Phys. Let. 26 A, 286; 1968
- [62] PAULIN R., AMBROSINO G.
Journal de Phys. 29 - 263; 1968
- [63] BRANDT W., PAULIN R.
Phys. Rev. Let. 21; 1968
- [64] CHANDRASEKHAR C.
Rev. Mod. Phys. 15, 1; 1943
- [65] AVAKIAN P., ERN P., MERRIFIELS R.E., SUNA A.
Phys. Rev. 165, 974; 1968
- [66] COUSSOT G., PAULIN R.
A publier
- [67] FRASER P.A.
Proc. Phys. Soc. 78, 329; 1961

[68] PAUL D.A.L.
Proc. Phys. Soc. 84, 563, 1964

[69] TAO, S.J.
Phys. Rev. Letters, 14, 935, 1965

ARTICLES GENERAUX

DEUTSCH, M.

Prog. nucl. phys. 3, 131, 1953

DEBENEDETTI, S., CORBEN, H.C.

A. Rev. nucl. sci. 4, 191, 1954

BELL, R.E.

Beta and gamma ray spectroscopy (SIEGBAHN, K. Ed) North Holland
Publishing 494, 1955

DEBENEDETTI, S.

Nuovo Cui. 4, suppl. 3, 1209, 1956

BERKO, S., HEREFORD F.L.

Rev. Mod. Phys. 28, 299, 1956

FERRELL, R.A.

Rev. Mod. Phys. 28, 308, 1956

SIMONS, L.

Handb. Phys. 34, 139, 1958

PAGE, L.A.

Rev. Mod. Phys. 31, 759, 1959

WALLACE, P.R.

Adv. Solid St. Phys. 10, 1, 1960

GREEN, J.H., LEE, J.

Positronium chemistry Academic Press New York London, (1964)

POSITON ANNIHILATION

(Proc. conf. Positon Annihilation tenue à Détroit 26 - 30 juillet 1965)

(STEWART, A.T., ROELLIG, L. Eds) Academic Press, 1967

GOLDANSKII, V.I.

Physical Chemistry of the positon and positonium 1 - 148

Edité par Agence Internationale de l'Energie Atomique - Vienne, 1968

Manuscrit reçu le 1er avril 1969

DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté

Vu
et permis d'impression
Le Recteur de l'Académie
de Paris

J. ROCHE

Vu et approuvé
Paris, le 14 Avril 1969
Le Doyen de la Faculté des Sciences

G. POITOU

